

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2005 年 1 月 20 日 (20.01.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/006816 A1

- (51) 国際特許分類: H05B 33/12
 (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/009290
 (22) 国際出願日: 2004 年 6 月 24 日 (24.06.2004)
 (25) 国際出願の言語: 日本語
 (26) 国際公開の言語: 日本語
 (30) 優先権データ:
 特願2003-195472 2003 年 7 月 11 日 (11.07.2003) JP
 (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
 (72) 発明者; および
 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松浦 正英

(MATSUURA, Masahide) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 福岡 賢一 (FUKUOKA, Kenichi) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 山本 弘志 (YAMAMOTO, Hiroshi) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 細川 地潮 (HOSOKAWA, Chishio) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 大谷 保, 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,

(続葉有)

(54) Title: WHITE ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE DEVICE

(54) 発明の名称: 白色系有機エレクトロルミネッセンス素子

A	陰極
B	(電子注入層)
C	電子輸送層 (含窒素化合物)
D	第1発光層
E	第2発光層
...	
F	第 i 発光層
...	
G	第 n 発光層
H	(正孔輸送層)
I	(正孔注入層)
J	陽極

A...CATHODE
 B...(ELECTRON INJECTION LAYER)
 C...ELECTRON TRANSPORT LAYER
 (NITROGEN-CONTAINING COMPOUND)
 D...FIRST LIGHT-EMITTING LAYER
 E...SECOND LIGHT-EMITTING LAYER
 F...i-TH LIGHT-EMITTING LAYER
 G...n-TH LIGHT-EMITTING LAYER
 H...(HOLE TRANSPORT LAYER)
 I...(HOLE INJECTION LAYER)
 J...ANODE

(57) Abstract: A white organic electroluminescence device comprising, between a pair of electrodes, two or more light-emitting layer and an electron transport layer made of a nitrogen-containing heterocyclic derivative or a silicon-containing heterocyclic derivative. The energy gap of the host material contained in the light-emitting layers is limited in a specific range, and the energy gap of the nitrogen-containing heterocyclic derivative or a silicon-containing heterocyclic derivative contained in the electron transport layer is limited in a specific range. The ionization potential of the nitrogen-containing heterocyclic derivative or silicon-containing heterocyclic derivative of the electron transport layer and that of the host material of the light-emitting layer in contact with the electron transport layer satisfy a specific relationship. The white organic electroluminescence operates on low voltage at high luminous efficiency, have a long life, and does not change in chromaticity.

(57) 要約: 一対の電極間に、2層以上の発光層と、含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体からなる電子輸送層を有する白色系有機エレクトロルミネッセンス素子であって、発光層に含まれるホスト材料のエネルギーギャップを特定の範囲とし、電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップを特定の範囲とし、電子輸送層の含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャルとそれに接する発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルとが特定の関係を満たす白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。低電圧でありながら発光効率が高く、寿命が長く、色度変化を起こさない白色系有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

WO 2005/006816 A1



LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA,
NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,
SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN,
TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書 IAP20 Rec'd PCT/JP 03 JAN 2006

白色系有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

本発明は、白色系有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、低電圧でありながら発光効率が高く、寿命が長く、色度変化を起こさない白色系有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

背景技術

有機物質を使用した有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般にEL素子は、発光層及び該層をはさんだ一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入される。さらに、この電子が発光層において正孔と再結合し、励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

また、最近では、白色系有機EL素子が、モノカラー表示用途、バックライトなどの照明用途の他、カラーフィルターによりフルカラー表示できる素子として注目を浴びている。

このような白色系有機EL素子を製造するために、特開2002-093583号公報では複数の発光層を有する発光層積層型の素子が提案されている。この発光層積層型有機EL素子は、発光層ごとにドーパントをドーピングすることで白色発光させ、ドーパントの種類を変えることにより、白色以外の発光も可能な

素子である。しかし、発光層積層型素子では、駆動電圧が高く、発光寿命が短く、また色度変化を起こしやすいといった問題があった。

発明の開示

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、低電圧でありながら発光効率が高く、寿命が長く、色度変化を起こさない白色系有機EL素子を提供することを目的とする。

本発明らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、発光層に含まれるホスト材料のエネルギーギャップを特定の範囲とし、電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップを特定の範囲とし、電子輸送層の含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャルとそれに接する発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルとが特定の関係を満たすことにより、前記の目的を達成することを見出し本発明を完成したものである。

すなわち、本発明は、一対の電極間に、2層以上の発光層と、含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体からなる電子輸送層を有する白色系有機EL素子であって、

それぞれの発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップ $E_g(\text{Host}-i)$ が下記式 (I) を満たし、

$$2.9\text{ eV} \leq E_g(\text{Host}-i) \quad \cdots (I)$$

(式中、 $E_g(\text{Host}-i)$ は、電子輸送層側から数えて i 層目 (i は1から n の整数) の発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップを表わす。) かつ、電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップ ($E_g(\text{ETM})$) が下記式 (II) を満たし、

$$2.9 \text{ eV} < E_g(\text{ETM}) \quad \dots (II)$$

かつ、電子輸送層に接する発光層に含まれるホスト化合物のイオン化ポテンシャル ($I_p(\text{Host}-1)$) と電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャル ($I_p(\text{ETM})$) が下記式(III)

$$I_p(\text{ETM}) \leq I_p(\text{Host}-1) + 0.3 \text{ eV} \quad \dots (III)$$

の関係を満たすことを特徴とする白色系有機EL素子を提供するものである。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子の構成の一例を示す図である。

第2図は、CIE色度座標における白色光の定義領域を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

本発明の白色系有機EL素子の層構成としては、第1図に示すような構成が挙げられ、例えば、

- (1) 陽極／発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極
- (2) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極
- (3) 陽極／赤色系発光層／青色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極
- (4) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／緑～赤色系発光層／青色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極
- (5) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／緑～赤色系発光層／白色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極

(6) 陽極／青色系発光層／緑～赤色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極

(7) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／青色系発光層／緑～赤色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極

(8) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／白色系発光層／緑～赤色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極

(9) 陽極／（正孔注入層／）正孔輸送層／青色系発光層／白色系発光層／電子輸送層（／電子注入層）／陰極

等が挙げられ、特に、(6)～(9)の素子構成が好ましく、青色系発光層を陽極側、緑～赤色系発光層を陰極側に積層した(6)の素子構成がさらに好ましい。なお、白色系発光層とは白色もしくはCIE色度座標での白色領域の発光を有する発光層を意味する。

なお、白色系発光層とは、半値幅の広い（80nm以上）もしくはCIE色度座標における白色領域の発光を有する発光層を意味する。第2図に白色光の定義をCIE座標にて示した。具体例としては、先に記載した「青色系発光層／緑～赤色発光層」や「緑～赤色発光層／青色発光層」等の積層型や特開平8-315983号公報記載のような発光の半値幅の広い発光材料又はドーパントを発光層に用いたものなどが挙げられる。

以上のような素子構成において、本発明の有機EL素子は、それぞれの発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップ $E_g(\text{Host}-i)$ が下記式(I)を満たし、

$$2.9\text{ eV} \leq E_g(\text{Host}-i) \quad \cdots (I)$$

(式中、 $E_g(\text{Host}-i)$ は、電子輸送層側から数えて*i*層目(*i*は1から*n*の整数)の発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップを表わす。)かつ、電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップ

($E_g(E_{TM})$) が下記式 (II) を満たし、

$$2.9 \text{ eV} < E_g(E_{TM}) \quad \dots (II)$$

かつ、電子輸送層に接する発光層に含まれるホスト化合物のイオン化ポテンシャル ($I_p(H_{ost-1})$) と電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャル ($I_p(E_{TM})$) が下記式 (III)

$$I_p(E_{TM}) \leq I_p(H_{ost-1}) + 0.3 \text{ eV} \quad \dots (III)$$

の関係を満たすものである。

また、 $E_g(H_{ost-i}) < 3.2 \text{ eV}$ 、 $E_g(E_{TM}) < 3.2 \text{ eV}$ であると好ましい。

前記エネルギーギャップは、対象有機物の希薄溶液（濃度 10^{-5} M 程度）を作成し、その吸収スペクトル最長端より算出できる。

前記イオン化ポテンシャルは、対象有機物にモノクロメーターで分光した重水素ランプの光を照射し、放出された光電子放出をエレクトロメータで測定し、得られた光電子放出の照射光子エネルギー曲線からの光電子放出の閾値を外挿法により求める等の方法で測定することができる。

本発明の有機 EL 素子は、発光層のホスト化合物が上記式 (I) を満たし、電子輸送層の含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体が上記式 (II) を満たし、特に、電子輸送層に接する発光層に含まれるホスト化合物のイオン化ポテンシャルと電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャルが上記式 (III) を満たすことにより、正孔障壁が大きすぎたり小さすぎたりすることが無く最適化され、正孔及び電子注入性が低下することが無く、正孔と電子が極めて効率的に発光層内で再結合することから、低電圧でありながら発光効率

が高く、寿命が長く、色度変化を起こさないのである。

式(III)は、 $I_p(E_{TM}) \leq I_p(H_{ost-1}) + 0.2 \text{ eV}$ であると好ましく、 $I_p(E_{TM}) \leq I_p(H_{ost-1}) + 0.1 \text{ eV}$ であるとさらに好ましい。

本発明の有機EL素子は、上記式(I)～(III)に加え、それぞれの発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップ $E_g(H_{ost-i})$ 及び電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップ($E_g(E_{TM})$)が下記式(IV)

$$2.9 \text{ eV} < E_g(E_{TM}) \leq E_g(H_{ost-i}) \quad \cdots (IV)$$

の関係を満たすと好ましい。

本発明の有機EL素子は、少なくとも1つの発光層が 2.9 eV 以下のエネルギーギャップ $E_g(D_{op-i})$ (i は1から n の整数)を有するドーパントを含むことが好ましく、特に、電子輸送層と界面を形成する発光層のエネルギーギャップ E_g が 2.65 eV 未満であるか、又は電子輸送層と界面を形成していない電子輸送層と界面を形成していない i が2以上である発光層のうち少なくとも1層がドーパントを含有し、下記式(V)

$$2.65 \text{ eV} < E_g(D_{op-i}) \leq 2.9 \text{ eV} \quad \cdots (V)$$

の関係を満たすと好ましく、これにより安定的に素子を発光させることができる。

ここで、発光層へのドーパントのドーピング濃度には特に制限はないが、好ましくは $0.05 \sim 15$ 重量%、より好ましくは $0.1 \sim 10$ 重量%である。また、1つの発光層に複数の種類のドーパントをドーピングしてもよい。

特に、白色発光素子では、2色又は3色の発光層の重ねあわせであり、そのためには少なくとも一種のドーパントを添加するこ

とが必要である。そして、電子輸送層と界面を形成していない i が 2 以上である発光層のうち少なくとも 1 層におけるドーパントのエネルギーギャップが、上記 (V) 式を満たすことにより、陽極側に光が取り出される際にドーパントでの再吸収発光等により色味の変化を小さくすることができる。

ここで、本発明における各発光層に含有するドーパントは高効率化や色味調整のために必ずしも 1 種である必要はなく、必要に応じて複数のドーパントを有してもよい。その形態としては、①同一ホスト化合物の部分ドーピングの形態や、②異なるホスト化合物かつ異なるドーパントの組み合わせ、①及び②の組み合わせ等が挙げられる。

また、本発明の有機 EL 素子は、発光ピーク波長の異なる発光層を 2 層以上有すると好ましく、これら各層が前記ドーパントを含有するとさらに好ましい。さらに、本発明の有機 EL 素子は、最大発光ピーク波長と 2 番目発光ピーク波長の差が 50 nm 以上であると好ましい。

また、白色有機 EL 素子の低電圧駆動・高効率化のために、前記電子輸送又は前記電子輸送層と陰極との界面領域に、仕事関数 2.8 eV 以下の金属又はその金属の化合物を設けると良い。そのような金属としては、アルカリ金属又はアルカリ土類金属、例えば Na, K, Rb, Cs, Ca, Sr 又は Ba が挙げられる。

更にまた、有機 EL 素子の安定発光や発光効率向上の目的で、電子輸送層を複数設けたり、陽極と発光層の間もしくは陰極と電子輸送層との間に無機化合物層を設けてもよい。無機化合物層に使用される無機化合物としては、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物、 SiO_x 、 AlO_x

、 SiN_x 、 SiON 、 AlON 、 GeO_x 、 LiO_x 、 LiON 、 TiO_x 、 TiON 、 TaO_x 、 TaON 、 TaN_x 、 C 、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、 MgF_2 、 NaF など各種酸化物、窒化物、酸化窒化物、ハロゲン化物を挙げることができる。

陽極と発光層の間に設ける層としては、 SiO_x 、 AlO_x 、 SiN_x 、 SiON 、 AlON 、 GeO_x 、 C が好ましい。また、陰極と電子輸送層の間に設ける層としては、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、 MgF_2 、 NaF が好ましい。

また、陽極に接する有機層には、酸化剤を添加していてもよい。好ましい酸化剤は電子吸引性または電子アクセプター性の酸化剤である。ルイス酸、各種キノン誘導体、ジシアノキノジメタン誘導体、芳香族アミンとルイス酸で形成された塩類等が挙げられる。ルイス酸としては、塩化鉄、塩化アンチモン、塩化アルミなどが挙げられる。陰極に接する有機層には、還元剤を添加してもよい。還元剤としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物が挙げられる。好ましいアルカリ金属は Cs 、 Li 、 Na 、 K である。

本発明において、発光層に用いることができる発光材料（ホスト材料）としては、上記式（I）を満たすものであればよく限定されない。具体例には、一般に使用される青色系発光材料が挙げられる。また、これら発光材料の発光特性は限定されるものではなく、公知の蛍光性材料でも燐光性材料でもよい。

さらに具体例な青色系発光材料としては、アントラセン誘導体、スチリル誘導体、芳香族アミン、混合配位子アルミニウムキレー

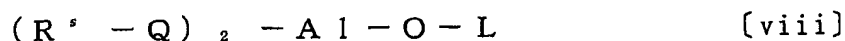
ト、カルバゾール誘導体が挙げられる。

前記アントラセン誘導体としては、フェニルアントラセン骨格を有する化合物が好ましい。

前記スチリル誘導体としては、ジスチリル誘導体、トリスチリル誘導体、テトラスチリル誘導体及びスチリルアミン誘導体が好ましい。

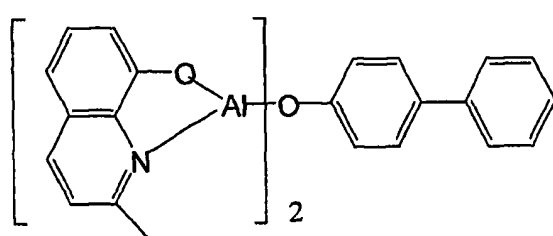
前記芳香族アミンとしては、芳香族置換された窒素原子を2～4個有する化合物が好ましく、芳香族置換された窒素原子を2～4個有し、かつアルケニル基を少なくとも一つ有する化合物が特に好ましい。

混合配位子アルミニウムキレートとしては、例えば下記式〔viii〕で示されるビス(R^{*}-8-キノリノラト)(フェノラト)アルミニウム(III)キレートを挙げることができる。

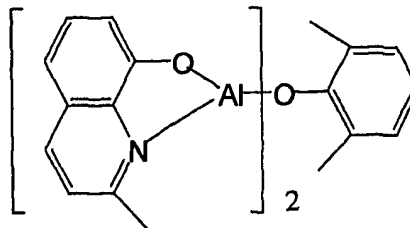


式中、Qは、置換8-キノリノラト配位子であり、R^{*}は8-キノリノラト環置換基であり、O-Lはフェノラト配位子であり、そしてLはアリール部を含む炭化水素基である。

混合配位子アルミニウムキレートとしては、下記の化合物等が好ましい。

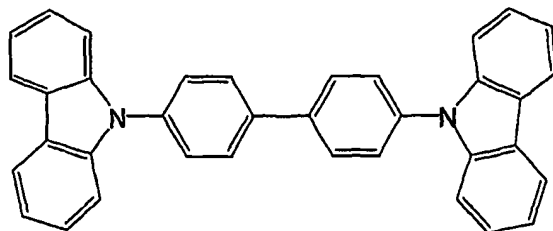


$$E_g(ETM)=3.0\text{eV}$$



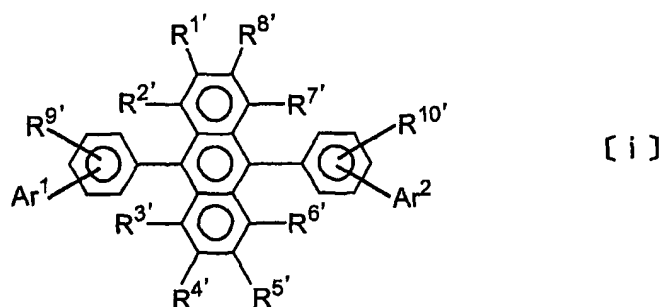
$$E_g(ETM)=3.0\text{eV}$$

また、カルバゾール誘導体としては、下記の化合物等が好ましい。



$$E_g(\text{ETM}) = 3.6 \text{ eV}$$

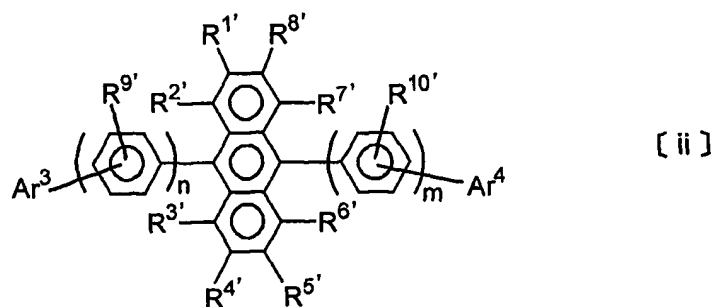
前記アントラセン誘導体としては、例えば、下記一般式〔i〕～〔v〕で示される化合物を挙げることができる。



〔式中、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 7 ～ 30 のアリールアルキル基、無置換の炭素原子数 5 ～ 30 の単環基、置換

もしくは無置換の炭素原子数 10～30 の縮合多環基又は置換
もしくは無置換の炭素原子数 5～30 のヘテロアリール基であ
る。

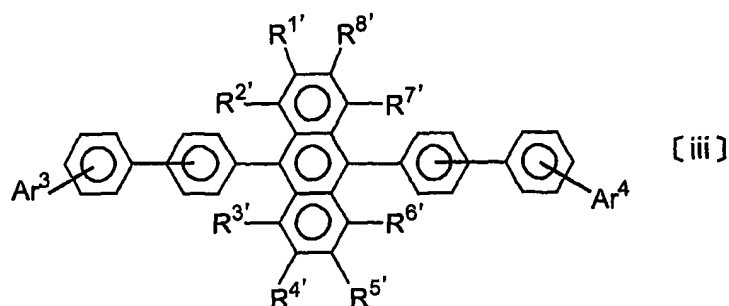
$Ar^{1'}$ 及び $Ar^{2'}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換
の炭素原子数 6～30 のアリール基又は置換もしくは無置換の
炭素原子数 1～20 のアルケニル基であり、置換基としては、置
換もしくは無置換の炭素原子数 1～20 のアルキル基、置換もし
くは無置換の炭素原子数 1～20 のアルコキシル基、置換もし
くは無置換の炭素原子数 6～30 のアリールオキシ基、置換もし
くは無置換の炭素原子数 1～20 のアルキルチオ基、置換もしくは
無置換の炭素原子数 6～30 のアリールチオ基、置換もしくは無
置換の炭素原子数 7～30 のアリールアルキル基、無置換の炭素
原子数 5～30 の単環基、置換もしくは無置換の炭素原子数 10
～30 の縮合多環基又は置換もしくは無置換の炭素原子数 5～
30 のヘテロアリール基である。]



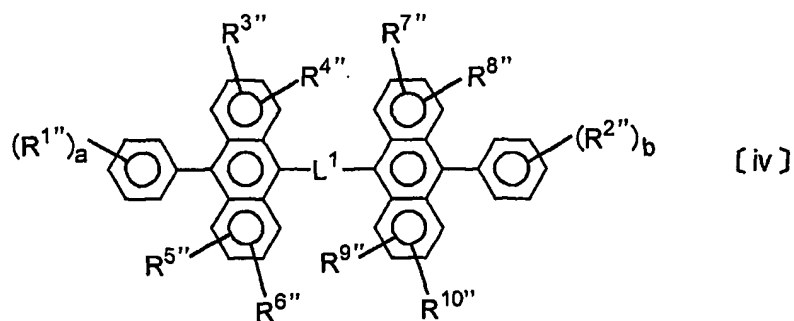
[式中、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ は、前記と同じである。

$Ar^{3'}$ 及び $Ar^{4'}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換
の炭素原子数 6～30 のアリール基又は置換もしくは無置換の
炭素原子数 1～20 のアルケニル基であり、置換基としては、置

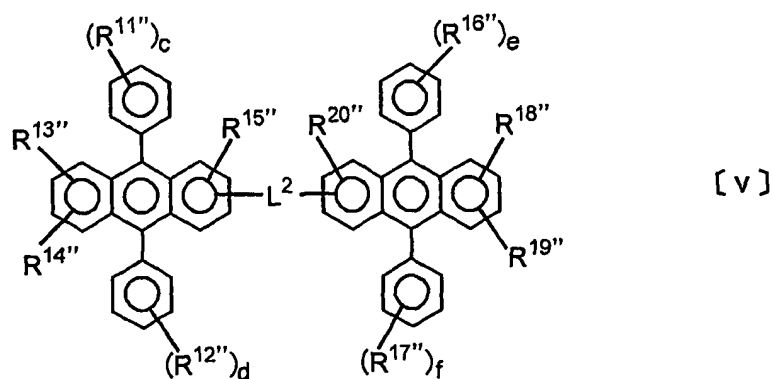
換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリアルチオ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 7 ～ 30 のアリアルアルキル基、無置換の炭素原子数 5 ～ 30 の単環基、置換もしくは無置換の炭素原子数 10 ～ 30 の縮合多環基、置換もしくは無置換の炭素原子数 5 ～ 30 のヘテロアリアル基又は置換もしくは無置換の炭素原子数 4 ～ 40 のアルケニル基である。n' は 1 ～ 3、m' は 1 ～ 3、かつ $n' + m' \geq 2$ である。]



[式中、 $R^{1'}$ ～ $R^{8'}$ 、 $Ar^{3'}$ 及び $Ar^{4'}$ は、前記と同じである。]



〔式中、式中、 $R^{1''}$ ～ $R^{10''}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素原子数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 30 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素原子数 1 ～ 40 アリールアミノ基又は置換もしくは無置換の炭素原子数 5 ～ 30 のヘテロアリール基を示し、 a 及び b は、それぞれ 1 ～ 5 の整数を示し、それらが 2 以上の場合、 $R^{1''}$ 同士又は $R^{2''}$ 同士は、それぞれ、同一でも異なってもよく、また $R^{1''}$ 同士又は $R^{2''}$ 同士が結合して環を形成していてもよいし、 $R^{3''}$ と $R^{4''}$ 、 $R^{5''}$ と $R^{6''}$ 、 $R^{7''}$ と $R^{8''}$ 、 $R^{9''}$ と $R^{10''}$ がたがいに結合して環を形成していてもよい。 L^1 は単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$ (R はアルキル基又は置換してもよいアリール基である) 又はアリーレン基を示す。〕



〔式中、 $R^{1'1''} \sim R^{2'0''}$ は、それぞれ独立に、 $R^{1''} \sim R^{1'0''}$ と同様であり、 c 、 d 、 e 及び f は、それぞれ 1 ～ 5 の整数を示し、それらが 2 以上の場合、 $R^{1'1''}$ 同士、 $R^{1'2''}$ 同士、 $R^{1'6''}$ 同士又は $R^{1'7''}$ 同士は、それぞれにおいて、同一でも異なっているもよく、また $R^{1'1''}$ 同士、 $R^{1'2''}$ 同士、 $R^{1'6''}$ 同士又は $R^{1'7''}$ 同士が結合して環を形成していてもよいし、 $R^{1'3''}$ と $R^{1'4''}$ 、 $R^{1'8''}$ と $R^{1'9''}$ がたがいに結合して環を形成していてもよい。 L^2 は L^1 と同様である。〕

上記一般式 (i) ～ (v) における、各基の具体例としては以下のようである。

アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 s -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ- t -ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ- t -ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo- t -ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-

ージョードー t ーブチル基、1, 2, 3 ートリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 ーアミノエチル基、2 ーアミノエチル基、2 ーアミノイソブチル基、1, 2 ージアミノエチル基、1, 3 ージアミノイソプロピル基、2, 3 ージアミノー t ーブチル基、1, 2, 3 ートリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 ーシアノエチル基、2 ーシアノエチル基、2 ーシアノイソブチル基、1, 2 ージシアノエチル基、1, 3 ージシアノイソプロピル基、2, 3 ージシアノー t ーブチル基、1, 2, 3 ートリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 ーニトロエチル基、2 ーニトロエチル基、2 ーニトロイソブチル基、1, 2 ージニトロエチル基、1, 3 ージニトロイソプロピル基、2, 3 ージニトロー t ーブチル基、1, 2, 3 ートリニトロプロピル基等が挙げられる。

アルコキシル基はーO Yで表される基であり、Yとしては前記アルキル基と同様である。

アルキルチオ基はーS Yで表される基であり、Yとしては前記アルキル基と同様である。

アリール基としては、例えば、フェニル基、1 ーナフチル基、2 ーナフチル基、1 ーアントリル基、2 ーアントリル基、9 ーアントリル基、1 ーフェナントリル基、2 ーフェナントリル基、3 ーフェナントリル基、4 ーフェナントリル基、9 ーフェナントリル基、1 ーナフタセニル基、2 ーナフタセニル基、9 ーナフタセニル基、1 ーピレニル基、2 ーピレニル基、4 ーピレニル基、2 ービフェニルイル基、3 ービフェニルイル基、4 ービフェニルイル基、p ーターフェニル ー 4 ーイル基、p ーターフェニル ー 3 ーイル基、p ーターフェニル ー 2 ーイル基、m ーターフェニル ー 4 ーイル基、m ーターフェニル ー 3 ーイル基、m ーターフェニル ー 2 ーイル基、o ートリル基、m ートリル基、p ートリル基、p ー

t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

アリールオキシ基は-OZ'で表される基であり、Z'としては前記アリール基と同様である。

アルキルチオ基は-SZ'で表される基であり、Z'としては前記アリール基と同様である。

アリールアルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ

ー2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

単環基としては、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘフタン等が挙げられる。

縮合多環基としては、例えば、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン等が挙げられる。

ヘテロアリール基としては、1-アザーインドリジン-2-イル基、1-アザーインドリジン-3-イル基、1-アザーインドリジン-5-イル基、1-アザーインドリジン-6-イル基、1-アザーインドリジン-7-イル基、1-アザーインドリジン-8-イル基、2-アザーインドリジン-1-イル基、2-アザーインドリジン-3-イル基、2-アザーインドリジン-5-イル基、2-アザーインドリジン-6-イル基、2-アザーインドリジン-7-イル基、2-アザーインドリジン-8-イル基、6-アザーインドリジン-1-イル基、6-アザーインドリジン-2-イル基、6-アザーインドリジン-3-イル基、6-アザーインドリジン-5-イル基、6-アザーインドリジン-7-イル基、6-アザーインドリジン-8-イル基、7-アザーインドリジン-1-イル基、7-アザーインドリジン-2-イル基、7-アザーインドリジン-3-イル基、7-アザーインドリジン-5-イル基、7-アザーインドリジン-6-イル基、7-アザーインドリジン-7-イル基、7-アザーインドリジン-8-イル基、8-アザーインドリジン-1-イル基、8-アザーインドリジン-2-イル基、8-アザーインドリジン-3-イル基、8-アザーインドリジン-5-イル基、8-アザーインドリジン-6-イル基、8-アザーインドリジン-7-イル基、1-インドリジニル

基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アク

リジニル基、9-アクリリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8

ーフェナンスロリンー6-イル基、2, 8-フェナンスロリンー7-イル基、2, 8-フェナンスロリンー9-イル基、2, 8-フェナンスロリンー10-イル基、2, 7-フェナンスロリンー1-イル基、2, 7-フェナンスロリンー3-イル基、2, 7-フェナンスロリンー4-イル基、2, 7-フェナンスロリンー5-イル基、2, 7-フェナンスロリンー6-イル基、2, 7-フェナンスロリンー8-イル基、2, 7-フェナンスロリンー9-イル基、2, 7-フェナンスロリンー10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロールー1-イル基、2-メチルピロールー3-イル基、2-メチルピロールー4-イル基、2-メチルピロールー5-イル基、3-メチルピロールー1-イル基、3-メチルピロールー2-イル基、3-メチルピロールー4-イル基、3-メチルピロールー5-イル基、2-*t*-ブチルピロールー4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロールー1-イル基、2-メチルー1-インドリル基、4-メチルー1-インドリル基、2-メチルー3-インドリル基、4-メチルー3-インドリル基、2-*t*-ブチル1-インドリル基、4-*t*-ブチル1-インドリル基、2-*t*-ブチル3-インドリル基、4-*t*-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、

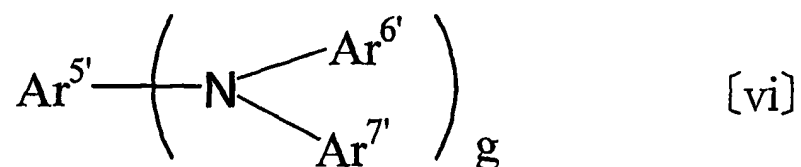
2-ブテニル基、3-ブテニル基、1,3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2,2-ジフェニルビニル基、2,2-ジトリルビニル基、1,2-ジトリルビニル基、1-メチルアリル基、1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3,3-ジフェニルアリル基、1,2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

シクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

アリールアミノ基としては、例えば、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ナフチルフェニルアミノ基等が挙げられる。

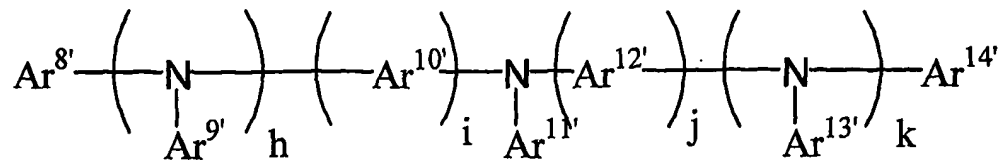
アルキルアミノ基としては、例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジヘキシルアミノ基等が挙げられる。

上記スチリル誘導体及び芳香族アミンとしては、例えば下記一般式〔vi〕～〔vii〕で示される化合物を挙げることができる。



〔式中、 $\text{Ar}^{5'}$ 、 $\text{Ar}^{6'}$ 及び $\text{Ar}^{7'}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素原子数6～40の芳香族基を示し、それらの中の少なくとも一つはスチリル基を含んでいてもよく、 g は1

～ 4 の整数を示す。]



[vii]

〔式中、 $\text{Ar}^{8'}$ 、 $\text{Ar}^{9'}$ 、 $\text{Ar}^{11'}$ 、 $\text{Ar}^{13'}$ 及び $\text{Ar}^{14'}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 40 の一価の芳香族基を示し、 $\text{Ar}^{10'}$ 及び $\text{Ar}^{12'}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素原子数 6 ～ 40 の二価の芳香族基を示し、 $\text{Ar}^{8'} \sim \text{Ar}^{14'}$ の少なくとも一つはスチリル基又はスチリレン基を含んでいてもよく、 h 及び k は、それぞれ 0 ～ 2 の整数である。〕

芳香族基としては、例えば、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、ピレン、コロネン、ビフェニル、ターフェニル、ピロール、フラン、チオフェン、ベンゾチオフェン、オキサジアゾリン、ジフェニルアントラセン、インドリン、カルバゾール、ピリジン、ベンゾキノン、フルオランテン、アセナフトフルオランテンなどを挙げることができる。

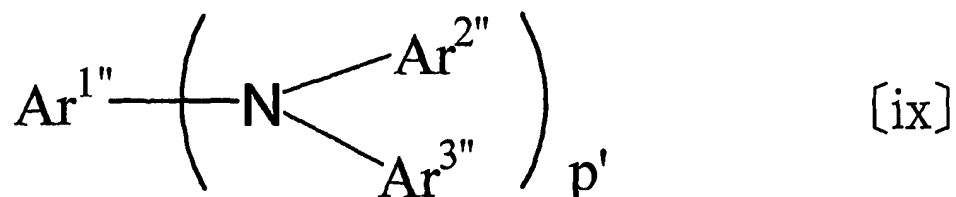
次に、本発明の有機 EL 素子において、発光層に添加することができるドーパントについて説明する。このようなドーパントとしては、青色系ドーパントや黄色～赤色系ドーパント等が挙げられる。

青色系ドーパントとしては、特に制限はないが、上記式 (V)

を満たすものであることが好ましい。

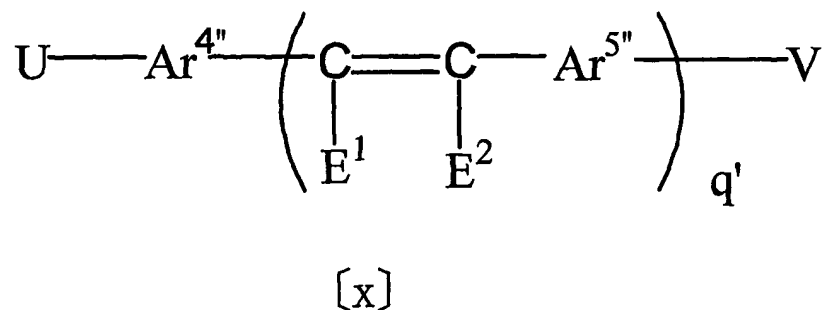
具体例な青色系ドーパントの例としては、スチリルアミン、アミン置換スチリル化合物及び縮合芳香族環含有化合物等を挙げることができる。

スチリルアミン及びアミン置換スチリル化合物としては、例えば、下記一般式〔ix〕～〔x〕で示される化合物を、縮合芳香族環含有化合物としては、例えば、下記一般式〔ix〕で示される化合物を挙げることができる。



〔式中、 $\text{Ar}^{1''}$ 、 $\text{Ar}^{2''}$ 及び $\text{Ar}^{3''}$ は、それぞれ独立に、炭素原子数 6 ～ 40 の置換もしくは無置換の芳香族基を示し、それらの中の少なくとも一つはスチリル基を含み、 p' は 1 ～ 3 の整数を示す。〕

芳香族基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。



[式中、 $A r^4$ 及び $A r^5$ は、それぞれ独立に、炭素原子数 6 ～ 30 のアリーレン基、 E^1 及び E^2 は、それぞれ独立に、炭素原子数 6 ～ 30 のアリール基もしくはアルキル基、水素原子又はシアノ基を示し、 q' は 1 ～ 3 の整数を示す。U 及び / 又は V はアミノ基を含む置換基であり、該アミノ基がアリールアミノ基であると好ましい。]

アリーレン基の具体例としては、前記したアリール基の具体例を 2 価の基としたもの等が挙げられ、アリール基、アルキル基及びアリールアミノ基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。

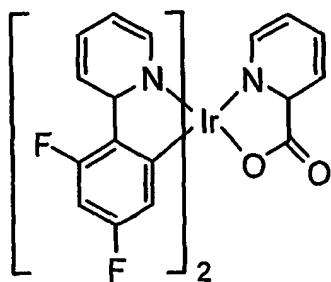


[式中、A は、炭素原子数 1 ～ 16 のアルキル基もしくはアルコキシル基、炭素原子数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換のアリール基、炭素原子数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換のアルキルアミノ基、又は炭素原子数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換のアリールアミノ基、B は炭素原子数 10 ～ 40 の縮合芳香族環基を示し、 r は 1 ～ 4 の整数を示す。]

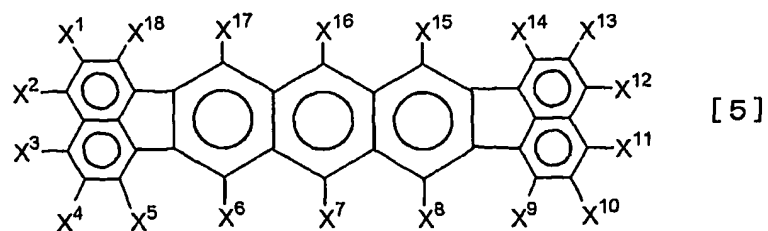
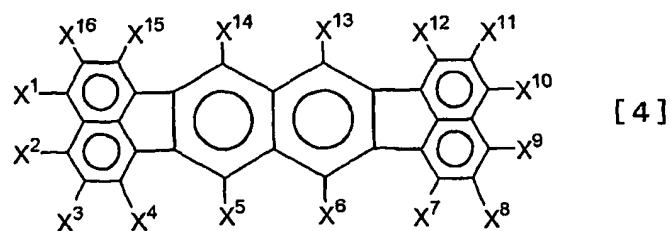
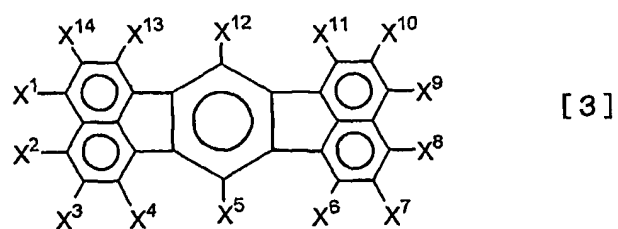
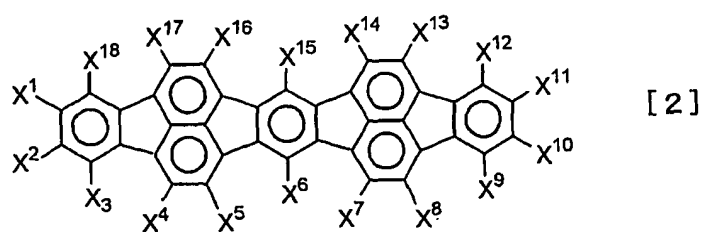
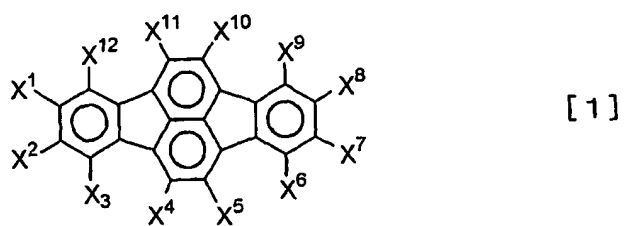
アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アルキルアミノ基及びアリールアミノ基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。

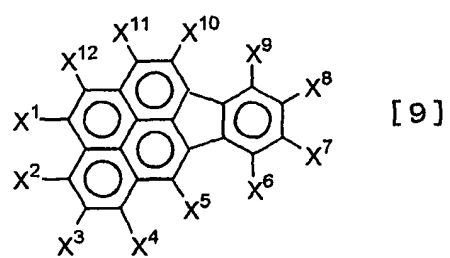
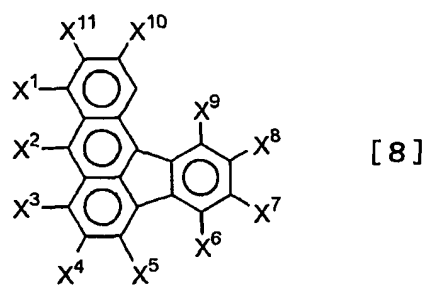
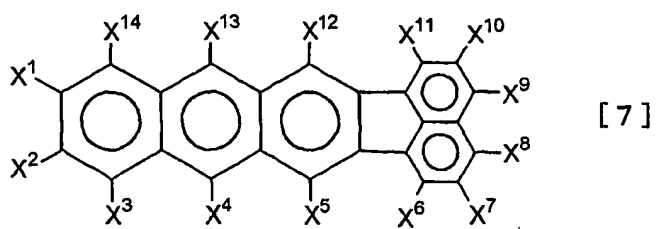
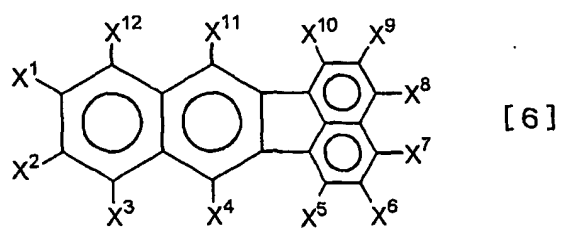
また、その他化合物として、フルオレセイン誘導体、ペリレン誘導体又はクマリン誘導体なども使用できる。

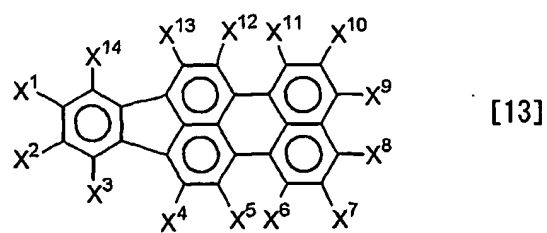
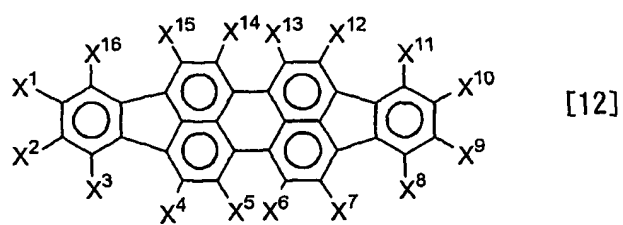
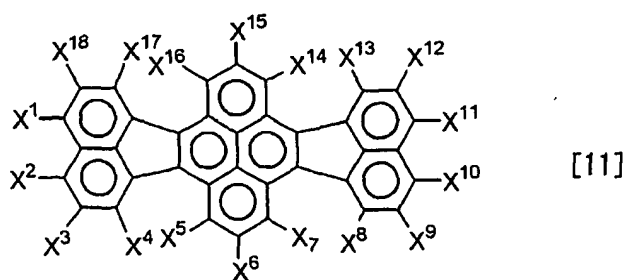
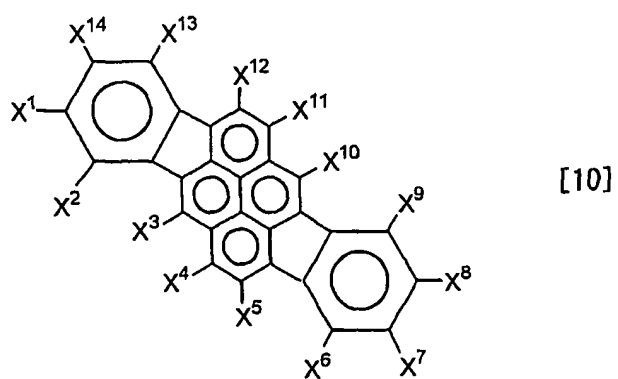
さらに、下記の錯体もドーパントとして好ましい。

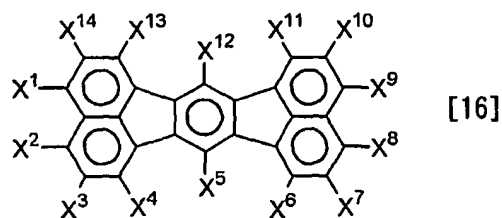
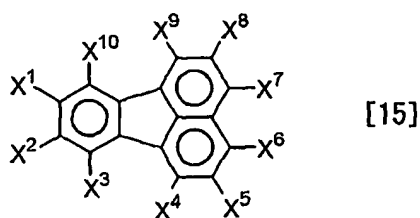
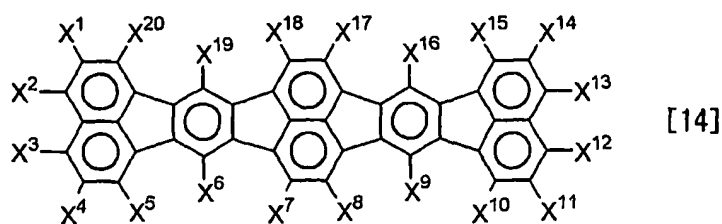


緑色～赤色系ドーパントとしては、特に制限はないが、そのエネルギーギャップ E_g が 2.65 eV 未満であるものが好ましい。このような緑色～赤色系ドーパントとしては、フルオランテン骨格又はペリレン骨格を有する蛍光性化合物が挙げられる。好ましくは、下記一般式〔1〕～〔18〕で示される化合物を挙げることができる。





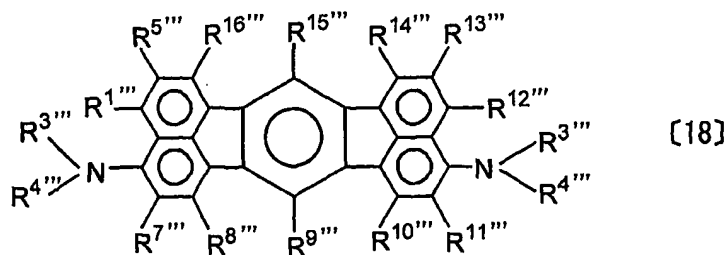
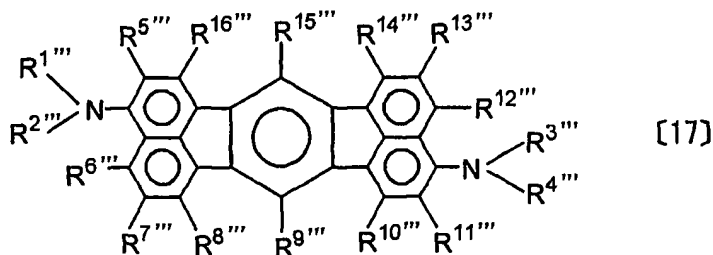




〔一般式〔1〕～〔16〕式中、 $X^1 \sim X^{20}$ は、それぞれ独立に、水素原子、直鎖、分岐もしくは環状の置換もしくは無置換の炭素原子数1～20のアルキル基、直鎖、分岐もしくは環状の置換もしくは無置換の炭素原子数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素原子数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素原子数6～30のアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素原子数1～30のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素原子数7～30のアリールアルキルアミノ基又は置換もしくは無置換炭素原子数8～30のアルケニル基であ

り、隣接する置換基及び $X^1 \sim X^{20}$ は結合して環状構造を形成していてもよい。隣接する置換基がアリール基の時は、置換基は同一であってもよい。]

アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアミノ基、アルキルアミノ基、アルケニル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。アリールアルキルアミノ基の具体例としては、アミノ基の水素を前記したアルキル基及びアリール基で置換したもの等が挙げられる。

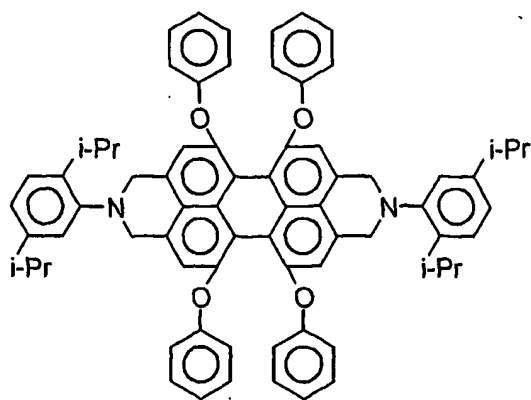


〔一般式〔17〕～〔18〕式中、 $R^{1'''} \sim R^{4'''}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素原子数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素原子数6～30のアリール基であり、 $R^{1'''} \text{と} R^{2'''}$ 及び／又は $R^{3'''} \text{と} R^{4'''}$ は、炭素－炭素結合又は－O－，－S－を介して結合していてもよい。 $R^{5'''}$

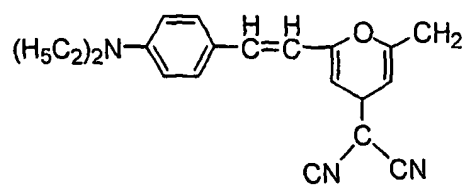
～R^{16'''} は、水素原子、直鎖、分岐もしくは環状の置換もしくはは無置換の炭素原子数 1～20 のアルキル基、直鎖、分岐もしくはは環状の置換もしくはは無置換の炭素原子数 1～20 のアルコキシル基、置換もしくはは無置換の炭素原子数 6～30 のアリール基、置換もしくはは無置換の炭素原子数 6～30 のアリールオキシ基、置換もしくはは無置換の炭素原子数 6～30 のアリールアミノ基、置換もしくはは無置換の炭素原子数 1～30 のアルキルアミノ基、置換もしくはは無置換の炭素原子数 7～30 のアリールアルキルアミノ基又は置換もしくはは無置換の炭素原子数 8～30 のアルケニル基であり、隣接する置換基及び R^{5'''}～R^{16'''} は結合して環状構造を形成していてもよい。各式中の置換基 R^{5'''}～R^{16'''} の少なくとも一つがアミン又はアルケニル基を含有すると好ましい。]

アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアミノ基、アルキルアミノ基、アルケニル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。アリールアルキルアミノ基の具体例としては、アミノ基の水素を前記したアルキル基及びアリール基で置換したもの等が挙げられる。

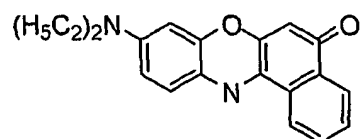
また、黄色～赤色系ドーパントとして使用できるその他の化合物として、例えばヨーロッパ公開特許第 0 2 8 1 3 8 1 号公報に記載されている赤色系発進レーザー色素として用いられるジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、フルオレセイン誘導体、ペリレン誘導体及びクマリン誘導体も好ましい。具体的な化合物としては、



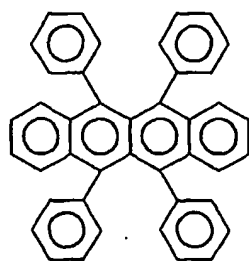
(ルモゲンレッド)



(ジシアノメチレンピラン)



(フェノキサゾン)

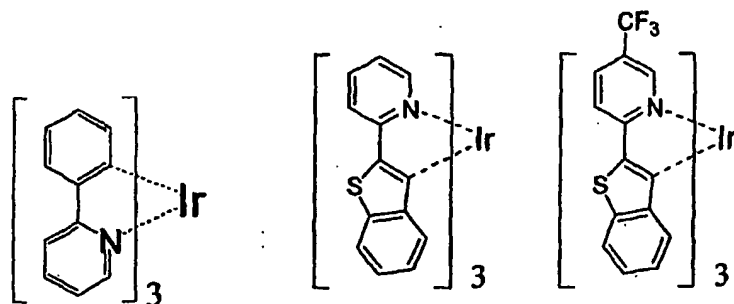


(ルブレン)

ルモゲンレッド $E_g(\text{ETM})=2.0\text{eV}$

ルブレン $E_g(\text{ETM})=2.2\text{eV}$

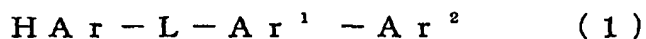
が挙げられ、さらに他の化合物として、



も挙げられる。

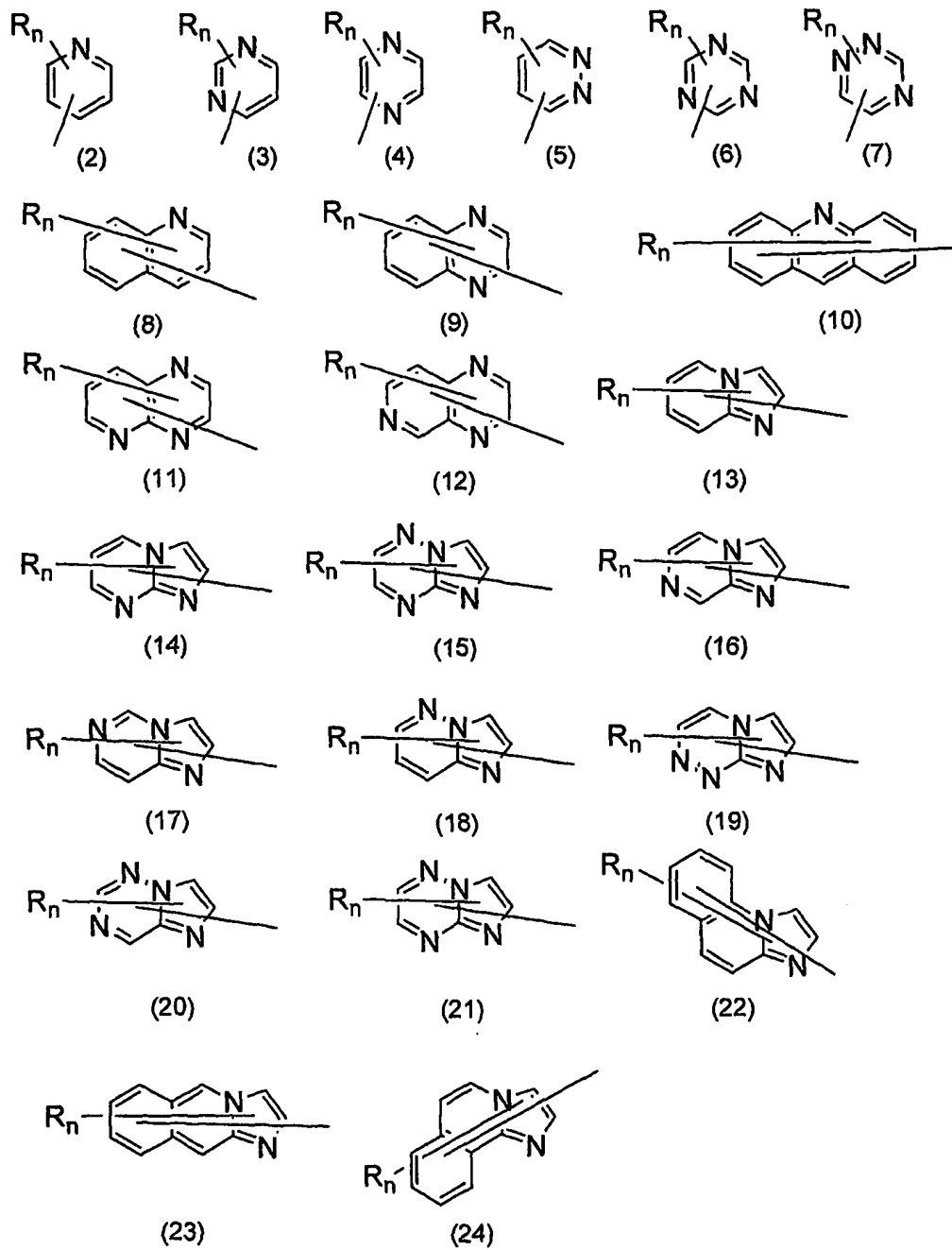
以下、本発明における電子輸送層に含まれる含窒素複素環化合物について説明する。

本発明の有機EL素子における前記電子輸送層は、下記一般式(1)

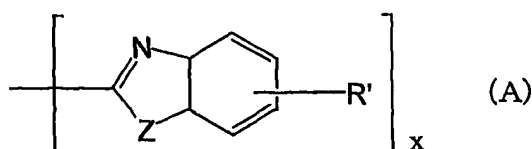


(式中、HArは置換もしくは無置換の含窒素複素環基、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基、Ar²は置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基、Lは単結合又は置換もしくは無置換のアリーレン基を示す。)で表される含窒素複素環誘導体を含むと好ましい。

一般式(1)において、前記HArは、下記一般式(2)～(24)、(A)のいずれかで表される含窒素複素環基、



(式中、Rは、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシル基であり、nは0～5の整数であり、nが2以上の場合、複数のRは互いに同一でも異なっているとしてもよく、複数のR同士が結合して環構造を形成してもよい。)

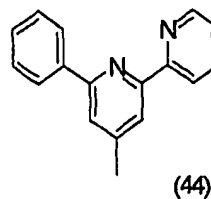
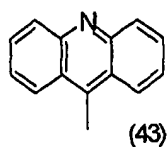
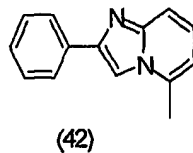
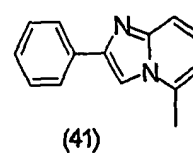
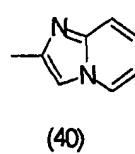
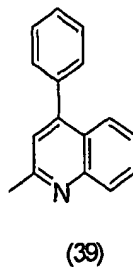
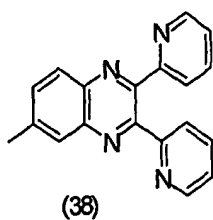
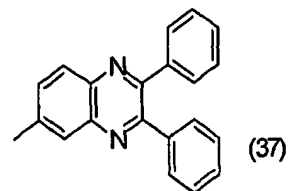
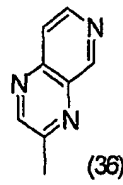
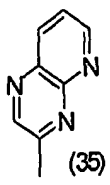
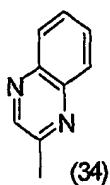
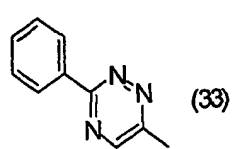
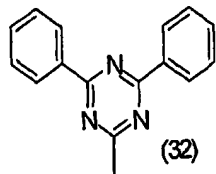
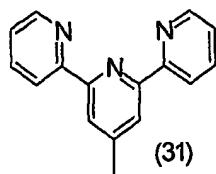
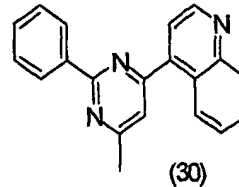
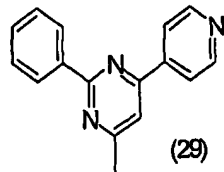
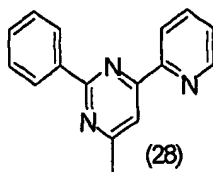
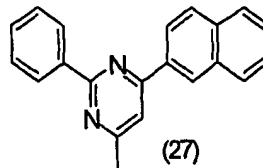
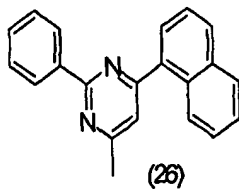
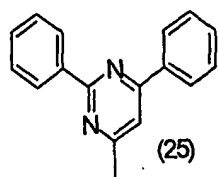


(式中、R'は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基、又は縮合芳香環形成基であり、Zは、酸素原子、硫黄原子又はNR' (R'は前記R'と同様である。)であり、xは2～8の整数である。)又は置換もしくは無置換のカルbazolリル基であると好ましい。

アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基及びアルコキシル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。

また、カルbazolリル基の置換基としては、前記R'と同様のものが挙げられる。

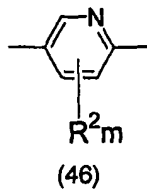
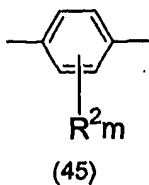
前記HArは、下記(25)～(44)



のいずれかで表される基であるとさらに好ましい。

一般式(1)において、前記Lは、下記一般式(45)又は(4

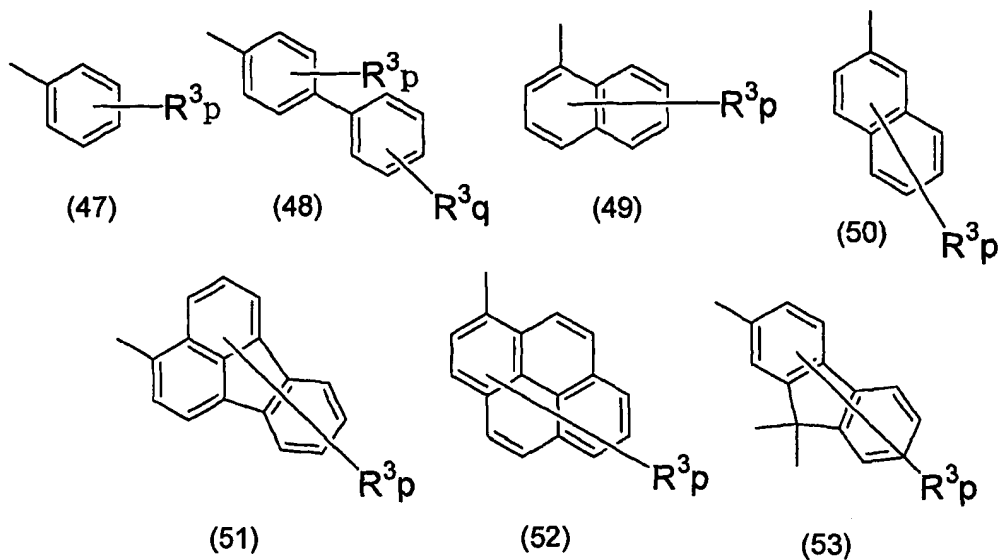
6)



(式中、 R^2 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシル基であり、 m は 0 ～ 4 の整数であり、 m が 2 以上の場合、複数の R^2 は互いに同一でも異なってもよく、複数の R^2 同士が結合して環構造を形成してもよい。) で表される基であると好ましい。

アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基及びアルコキシル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。

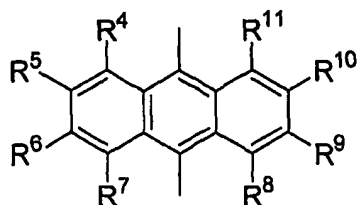
一般式 (1) において、前記 Ar^2 は、下記一般式 (47) ～ (53)



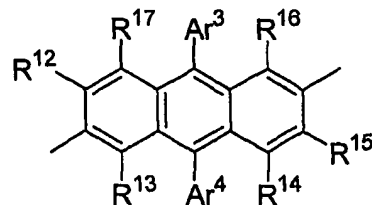
(式中、 R^3 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシル基であり、 p は 0 ～ 9 の整数、 q は 0 ～ 5 の整数であり、 p 又は $p + q$ が 2 以上の場合、複数の R^3 は互いに同一でも異なってもよく、複数の R^3 同士が結合して環構造を形成してもよい。) のいずれかで表される基であると好ましい。

アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基及びアルコキシル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。

一般式 (1) において、前記 Ar^1 が、下記一般式 (54) 又は (55)



(54)



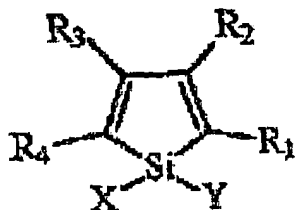
(55)

(式中、R⁴ ~ R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数3~40のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシル基であり、Ar³及びAr⁴は、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3~40のヘテロアリール基である。)で表される基であると好ましい。

アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基及びアルコキシル基の具体例としては、前記したもの等が挙げられる。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

また、本発明における電子輸送層に含まれる含珪素複素環誘導体の具体例としては、特開平09-194487号公報に記載の化合物等が挙げられる。

例えば、下記に示すようなシラシクロペンタジエン誘導体等が挙げられる。



[式中、X及びYは、それぞれ独立に、炭素数1から6までの飽和もしくは不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アルキニルオキシ基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロ環又はXとYが結合して飽和もしくは不飽和の環を形成した構造であり、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～6までのアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基、アミノ基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アゾ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、アルコキシカルボニルオキシ基、アリールオキシカルボニルオキシ基、スルフィニル基、スルフォニル基、スルファニル基、シリル基、カルバモイル基、アリール基、ヘテロ環基、アルケニル基、アルキニル基、ニトロ基、ホルミル基、ニトロソ基、ホルミルオキシ基、イソシアノ基、シアネート基、イソシアネート基、チオシアネート基、イソチオシアネート基、もしくはシアノ基又は隣接した場合には置換もしくは無置換の環が縮合した構造である(ただし、 R_1 及び R_4 がフェニル基の場合、X及びYは、アルキル基及びフェニル基ではなく、 R_1 及び R_4 がチエニル基の場合、X及びYは、一価炭化水素基を、 R_2 及び R_3 は、アルキル基、アリー

ル基、アルケニル基又は R_2 と R_3 が結合して環を形成する脂肪族基を同時に満たさない構造であり、 R_1 及び R_4 がシリル基の場合、 R_2 、 R_3 、 X 及び Y は、それぞれ独立に、炭素数1～6の一価炭化水素基又は水素原子でなく、 R_1 及び R_2 でベンゼン環が縮合した構造の場合、 X 及び Y は、アルキル基及びフェニル基ではない)。]

本発明の有機EL素子構成においては、正孔注入層や電子注入層は、必ずしも必要ではないが、これらの層を有する素子は発光性能が向上する利点を有している。また、一对の電極間に、正孔輸送層（正孔注入層）、発光層、電子注入層を混合させた形で挟持させてもよい。さらに、各構成成分を安定に存在させるため、高分子化合物などのバインダーを用いて混合層を作製してもよい。

ここでは、陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極型を例として、本発明の有機EL素子について説明する。本発明の有機EL素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については、特に制限はなく、従来から有機EL素子に慣用されているものであればよく、例えば、ガラス、透明プラスチック、石英などからなるものを用いることができる。

この有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Auなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの導電性透明材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより作製することができる。陽極側より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望まし

く、また、電極としてのシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下であることが好ましい。さらに、陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10 nm \sim 1 μ m、好ましくは10 \sim 200 nmの範囲で選ばれる。

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム-インジウム合金、Al/Al₂O₃、インジウム、アルミニウム-リチウム合金などが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は、通常10 \sim 500 nm、好ましくは50 \sim 200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であれば、発光効率が向上し好都合である。

本発明の有機EL素子における発光層を構成する発光材料としては、上記したようなホスト材料を用いる。ホスト材料には前記したドーパントの他に、従来公知の発光材料の中から任意のものを選択して用いることができる。このような発光材料としては、例えば、多環縮合芳香族化合物、ベンゾオキサゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系などの蛍光増白剤、金属キレート化オキサノイド化合物、ジスチリルベンゼン系化合物などの薄膜形成性の良い化合物を用いることができる。ここで、上記多環縮合芳香族化合物としては、例えば、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン骨格を含む縮合環発光物質や、約8個の縮合環を含む他の縮合環発光物質な

どを挙げることができる。具体的には、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニルなどを用いることができる。この発光層は、これらの発光材料の1種又は2種以上からなる1層で構成されてもよいし、あるいは該発光層とは別種の化合物からなる発光層を積層したものであってもよい。

本発明の有機EL素子における正孔輸送層（正孔注入層）は、正孔伝達化合物からなるものであって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界印加で多くの正孔が発光層に注入される。そのうえ、発光層に陰極又は電子注入層より注入された電子は、発光層と正孔輸送層（正孔注入層）の界面に存在する電子の障壁により、発光層内の界面に累積され、発光効率が向上するなど発光性能の優れた素子が得られる。このような正孔輸送層（正孔注入層）に用いられる正孔伝達化合物は、電界が印加された2個の電極間に配置されて、陽極から正孔が注入されたときに、正孔を適切に発光層へ伝達しうるものであり、例えば、 $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に少なくとも $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ の正孔移動度を有するものが好適である。この正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入・輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔輸送層（正孔注入層）に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

前記正孔伝達化合物としては、例えば、銅フタロシアニンや、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニ

ル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル (TPDA)、2, 2 - ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) プロパン、1, 1 - ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) シクロヘキサン、N, N, N', N' - テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニルなどが挙げられる。また、Si、SiC、CdSなどの無機物半導体の結晶、非晶材料も用いることができる。この正孔注入層は、これらの正孔注入材料1種又は2種以上からなる1層で構成されてもよいし、あるいは、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。

本発明の有機EL素子の好ましい実施形態として、電子を輸送する領域又は陰極と有機化合物層の界面領域に、還元性ドーパントを含有する素子がある。本発明では、本発明化合物に還元性ドーパントを含有する有機EL素子が好ましい。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元できる物質と定義される。従って、一定の還元性を有するものであれば様々なものを用いることができ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一種の物質であることが好ましい。

また、好ましい還元性ドーパントとしては仕事関数が2.9 eV以下のものが好ましく、より具体的には、Na (仕事関数: 2.36 eV)、K (仕事関数: 2.28 eV)、Rb (仕事関数: 2.16 eV) 及びCs (仕事関数: 1.95 eV) からなる群から選択される1種又は2種以上のアルカリ金属や、Ca (仕事

関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）及びBa（仕事関数：2.52 eV）からなる群から選択される1種又は2種以上のアルカリ土類金属が挙げられる。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsからなる群から選択される1種又は2種以上のアルカリ金属であり、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましいのはCsである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化を達成することができる。また、仕事関数が2.9 eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRbあるいはCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせることで、還元能力を効率的に発揮させることができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が達成される。また、アルカリ金属の他にアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される1種又は2種以上の金属化合物を使用しても同様の効果が得られるし、アルカリ金属有機錯体、アルカリ土類金属有機錯体を用いても同様の効果が得られる。

本発明の有機EL素子においては、陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けてもよい。電子注入層を設けることにより、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン

化物からなる群から選択される1種又は2種以上の金属化合物を使用することが好ましい。電子注入層がこれらの金属化合物で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、具体的には、例えば、 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び NaO が挙げられる。好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 などのフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、電子注入層を構成する半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 及び Zn からなる群から選択される1種又は2種以上の元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の1種単独又は2種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物は、微結晶性又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの無機化合物で構成されていれば、より均質な薄膜が形成できるため、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

次に、本発明の有機EL素子の作製方法について説明する。好適な例として、前記の陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／

陰極型の有機EL素子の作製法について説明する。まず、適当な基板上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim 200\text{ nm}$ の範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成し、陽極とする。次に、この上にEL素子構成要素である正孔輸送層、複数の発光層、電子輸送層を、順次、各構成材料からなる薄膜を形成することにより積層して作製する。ここで用いる薄膜形成方法としては、前記のようなスピコート法、キャスト法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくいなどの点から真空蒸着法が好ましい。この薄膜化に、真空蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は使用する化合物の種類、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般に、ポート加熱温度 $50\sim 400\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-6}\sim 10^{-3}\text{ Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{ nm/秒}$ 、基板温度 $-50\sim 300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、膜厚 $5\text{ nm}\sim 5\text{ }\mu\text{m}$ の範囲で適宜選択することが望ましい。これらの層の形成後、その上に、例えば、蒸着やスパッタリングなどの方法により、陰極用物質からなる、膜厚 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $50\sim 200\text{ nm}$ の範囲の薄膜を形成し、陰極とすることにより、所望の有機EL素子が得られる。なお、この有機EL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、陽極の順に作製することもできる。

【実施例】

次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

なお、化合物のエネルギーギャップ及びイオン化ポテンシャルは、以下のようにして測定した。

(1) エネルギーギャップ (E_g) の測定

励起 1 重項エネルギーギャップの値を測定した。すなわち、試料のトルエン溶液 (10^{-5} モル/リットル) を用い日立社製紫外可視吸光計を用い吸収スペクトルを測定した。スペクトルの長波長側の立ち上りに対し接線を引き横軸との交点である波長(吸収端)を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

(2) イオン化ポテンシャル (I_p) の測定

理研計器社製、大気下光電子分光装置 AC-1 を用い、測定化合物について得られた光電子放出の照射光子エネルギー曲線からの光電子放出の閾値を外挿法により求めた。

実施例 1 (青色系発光層/黄色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の N, N'-ビス (N, N'-ジフェニル-4-アミノフェニル) -N, N'-ジフェニル-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニル膜 (以下「TPD232 膜」と略記する。) を成膜した。この TPD232 膜は、正孔注入層として機能する。この TPD232 膜上に膜厚 20 nm の N, N, N', N'-テトラ (4-ビフェニル) -ジアミノビフェニル膜 (以下「TBTB 膜」と略記する。: $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 3.1 \text{ eV}$) を成膜した。この TBTB 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、TBTB 膜上に、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体として 4', 4''-ビス (2, 2-ジ

励起 1 重項エネルギーギャップの値を測定した。すなわち、試料のトルエン溶液 (10^{-5} モル/リットル) を用い日立社製紫外可視吸光計を用い吸収スペクトルを測定した。スペクトルの長波長側の立ち上りに対し接線を引き横軸との交点である波長(吸収端)を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

(2) イオン化ポテンシャル (I_p) の測定

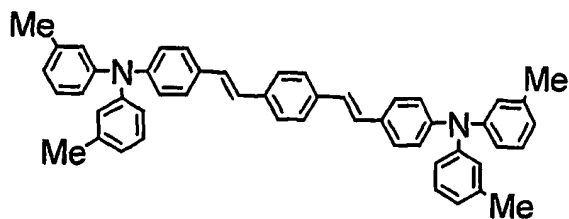
理研計器社製、大気下光電子分光装置 AC-1 を用い、測定化合物について得られた光電子放出の照射光子エネルギー曲線からの光電子放出の閾値を外挿法により求めた。

実施例 1 (青色系発光層/黄色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

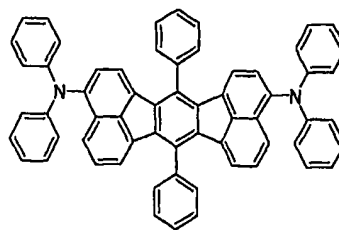
25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の N, N'-ビス (N, N'-ジフェニル-4-アミノフェニル) -N, N'-ジフェニル-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニル膜 (以下「TPD232 膜」と略記する。) を成膜した。この TPD232 膜は、正孔注入層として機能する。この TPD232 膜上に膜厚 20 nm の N, N, N', N'-テトラ (4-ビフェニル) -ジアミノビフェニル膜 (以下「TBTB 膜」と略記する。: $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 3.1 \text{ eV}$) を成膜した。この TBTB 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、TBTB 膜上に、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体として 4', 4''-ビス (2, 2-ジ

フェニルビニル) - 9, 10-ジフェニルアントラセン (DPVDPAN) ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と下記化合物 B1 (発光ピーク 470 nm , $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 2.8 \text{ eV}$) をドープント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸着して成膜し、第一発光層 (青色系発光層) とした。さらに、膜厚 30 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と下記化合物 R1 (発光ピーク 560 nm , $I_p = 5.6 \text{ eV}$, $E_g = 2.6 \text{ eV}$) をドープント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸着し成膜し、第二発光層 (黄色系発光層) とした。この膜上に電子輸送層として膜厚 20 nm の ETM20 ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) を成膜した。この後、LiF を膜厚 1 nm にて抵抗加熱蒸着させ、電子注入陰極を形成した。この薄膜上に金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成し白色系有機 EL 素子を作製した。

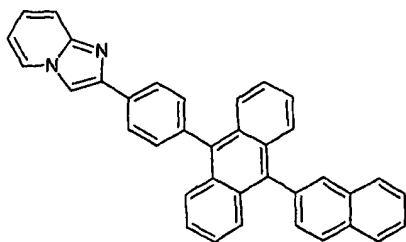
得られた有機 EL 素子について、通電試験を行なったところ、電圧 5.0 V 、電流密度 11.0 mA/cm^2 にて、発光輝度 1000 nit の白色発光が得られ、色度座標は $(0.33, 0.33)$ 、発光効率は 9.1 cd/A 、 5.7 ルーメン/W であった。また、初期輝度 1000 nit にて室温下、 1500 時間駆動後の輝度を測定したところ 700 nit であった。



B1



R1



ETM20

実施例 2 (青色系発光層／黄色系発光層／青色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

実施例 1 において、発光層を以下のようにして形成した以外は同様にして、白色系有機 EL 素子を作製した。

すなわち、TBTB 膜上に、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 B1 (発光ピーク 470 nm, $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 2.8 \text{ eV}$) をドーパント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸

着して成膜し、第一発光層（青色系発光層）とした。さらに、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 R1 (発光ピーク 560 nm, $I_p = 5.6 \text{ eV}$, $E_g = 2.6 \text{ eV}$) をドーパント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸着し成膜し、第二発光層（黄色系発光層）とした。この後、膜厚 20 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 B1 (発光ピーク 470 nm, $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 2.8 \text{ eV}$) をドーパント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸着して成膜し、第三発光層（青色系発光層）とした。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行なったところ、電圧 4.5 V、電流密度 10.0 mA/cm² にて、発光輝度 1000 nit の白色発光が得られ、色度座標は (0.28, 0.35)、発光効率は 10.0 cd/A、7.0 ルーメン/W であった。また、初期輝度 1000 nit にて室温下、1500 時間駆動後の輝度を測定したところ 600 nit であった。

実施例 3 (黄色系発光層 / 青色系発光層 / 黄色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

実施例 1 において、発光層を以下のようにして形成した以外は同様にして、白色系有機 EL 素子を作製した。

すなわち、TBTB 膜上に、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 R1 (発光ピーク 560 nm, $I_p = 5.6 \text{ eV}$, $E_g = 2.6 \text{ eV}$) をドーパント化合物として 40 : 2 の膜厚比で共蒸着し成膜し、第一発光層（黄色系発光層）とした。さらに、膜厚 10 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$,

$E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 B1 (発光ピーク 470 nm , $I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 2.8 \text{ eV}$) をドーパント化合物として $40:2$ の膜厚比で共蒸着して成膜し、第二発光層 (青色系発光層) とした。この後、膜厚 20 nm にてスチリル誘導体 DPVDPAN ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) と上記化合物 R1 ($I_p = 5.6 \text{ eV}$, $E_g = 2.6 \text{ eV}$) をドーパント化合物として $40:2$ の膜厚比で共蒸着し成膜し、第三発光層 (黄色系発光層) とした。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行なったところ、電圧 5.3 V 、電流密度 11.0 mA/cm^2 にて、発光輝度 1000 nit の白色発光が得られ、色度座標は $(0.32, 0.35)$ 、発光効率は 9.1 cd/A 、 5.4 ルーメン/W であった。また、初期輝度 1000 nit にて室温下、 1500 時間駆動後の輝度を測定したところ 800 nit であった。

比較例 1 (青色系発光層 / 緑色 ~ 赤色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

$25 \text{ mm} \times 75 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$ 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の TPD232 膜を成膜した。この TPD232 膜は、正孔注入層として機能する。この TPD232 膜上に膜厚 20 nm の 4,4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル膜 (以下「NPD 膜」と略記する。) を成膜した。この NPD 膜は正孔

輸送層として機能する。さらに、NPD膜上に、膜厚20nmにてスチリル誘導体DPVPDAN($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$)と上記化合物B1($I_p = 5.5 \text{ eV}$, $E_g = 2.8 \text{ eV}$)を20:1.5の膜厚比で蒸着し成膜し、青色系発光層とした。次いで、20nmにてスチリル誘導体DPVPDANと上記化合物R1を20:1の膜厚比で蒸着し成膜し、緑色～赤色系発光層とした。この膜上に電子輸送層として膜厚20nmの下記t-BuPBD($I_p = 6.1 \text{ eV}$, $E_g = 3.1 \text{ eV}$)を成膜した。この後、LiF(Li源:サエスゲッター社製)を1nm成膜した。この薄膜上に金属Alを150nm蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子について、通電試験を行なったところ、電圧7V、電流密度 2.0 mA/cm^2 にて、発光輝度110nitの発光が得られ、色度座標は(0.25, 0.33)、発光効率は 5.5 cd/A 、 2.5 ルーメン/W であった。また、初期輝度1000nitにて室温下、1500時間駆動後の輝度を測定したところ300nitであった。

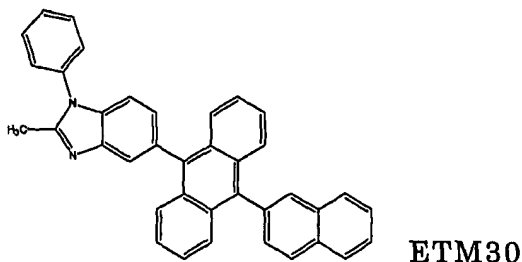


t-BuPBD (t-Buはt-ブチル基)

実施例4(青色系発光層/黄色系発光層の積層型有機EL素子の作製)

実施例 1 において、電子輸送層として ETM 20 の代わりに ETM 30 (ベンゾイミダゾール系) ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) を用いた以外は全く同様に白色系有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行ったところ、電圧 5.3 V 、電流密度 10 mA/cm^2 にて、発光輝度 1150 nit の白色発光が得られ、色度座標は $(0.28, 0.33)$ 、発光効率 11.5 cd/A 、 6.8 ルーメン/W であった。また初期輝度 1000 nit にて室温下、定電流駆動時、 1500 時間後の輝度は 780 nit であった。

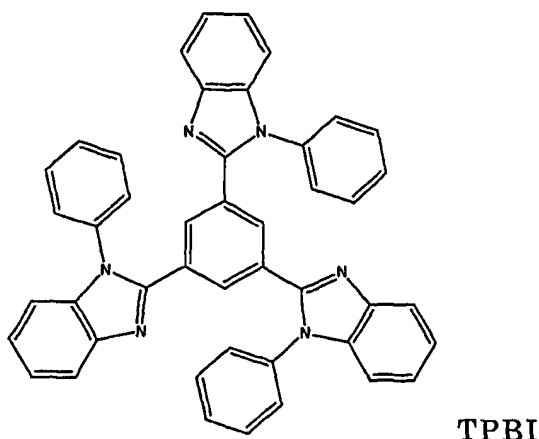


比較例 2 (青色系発光層/緑色～赤色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

実施例 1 と第二発光層の蒸着までは全く同様とし、この後、電子輸送層として TPBI ($I_p = 6.1 \text{ eV}$, $E_g = 3.6 \text{ eV}$) を膜厚 10 nm 積層し、この後サエスゲッターズ社製アルカリディスプレイペンサーから、Na を膜厚 0.5 nm 蒸着させ、電子注入陰極を形成した。その後は実施例 1 と同様、金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成し白色系有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行ったところ、電圧 5.0 V 、電流密度 10 mA/cm^2 にて、発光輝度 1050 nit の白色発光が得られ、色度座標は $(0.27, 0.33)$ 、発光

効率は 10.5 cd/A 、 6.6 ルーメン/W であった。また初期輝度 1000 nit にて室温下、定電流駆動時、時間後の輝度は 300 nit であった。



実施例 5 (青色系発光層／黄色系発光層／青色系発光層の積層型有機 EL 素子の作製)

実施例 1 と第二発光層の蒸着までは全く同様とし、この後、電子輸送層として ETM30 ($I_p = 5.7 \text{ eV}$, $E_g = 3.0 \text{ eV}$) を膜厚 10 nm 積層し、この後サエスゲッターズ社製アルカリディスプレイペンスから、Na を膜厚 0.5 nm 蒸着させ、電子注入陰極を形成した。

その後は実施例 1 と同様、金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成し白色系有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について電流密度 10 mA/cm^2 にて通電試験を行い、初期輝度 1000 nit からの寿命試験を行い、表 1 に示す結果を得た。

実施例 6 (青色系発光層／黄色系発光層／青色系発光層の積層型

有機 E L 素子の作製)

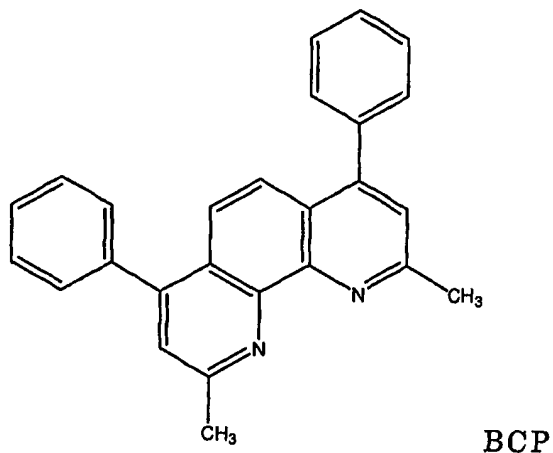
実施例 1 と第二発光層の蒸着までは全く同様とし、この後、電子輸送層として E T M 3 0 を膜厚 1 0 n m 積層し、さらにその上に E T M 3 0 を 1.0 \AA/s にて、同時に C s を 0.1 \AA/s にてサエスゲッターズ社製アルカリディスペンサーで共蒸着を行い、膜厚 1 0 n m の電子注入混合陰極を形成した。その後は実施例 1 と同様、金属 A l を 1 5 0 n m 蒸着させ金属陰極を形成し白色系有機 E L 素子を作製した。

得られた有機 E L 素子について電流密度 10 mA/cm^2 にて通電試験を行い、初期輝度 1000 nit からの寿命試験を行い、表 1 に示す結果を得た。

比較例 3 (青色系発光層／緑色～赤色系発光層の積層型有機 E L 素子の作製)

実施例案 1 において、電子輸送層として E T M 2 0 の代わりに B C P を用いた以外は全く同様に白色系有機 E L 素子を作製した。

得られた有機 E L 素子について通電試験および寿命試験を行い、表 1 に示す結果を得た。



有機EL素子の作製)

実施例1と第二発光層の蒸着までは全く同様とし、この後、電子輸送層としてETM30を膜厚10nm積層し、さらにその上にETM30を1.0Å/sにて、同時にCsを0.1Å/sにてサエグッターズ社製アルカリディスペンサーで共蒸着を行い、膜厚10nmの電子注入混合陰極を形成した。その後は実施例1と同様、金属Alを150nm蒸着させ金属陰極を形成し白色系有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子について電流密度10mA/cm²にて通電試験を行い、初期輝度1000nitからの寿命試験を行い、表1に示す結果を得た。

比較例3(青色系発光層/緑色～赤色系発光層の積層型有機EL素子の作製)

実施例案1において、電子輸送層としてETM20の代わりにBCPを用いた以外は全く同様に白色系有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子について通電試験および寿命試験を行い、表1に示す結果を得た。

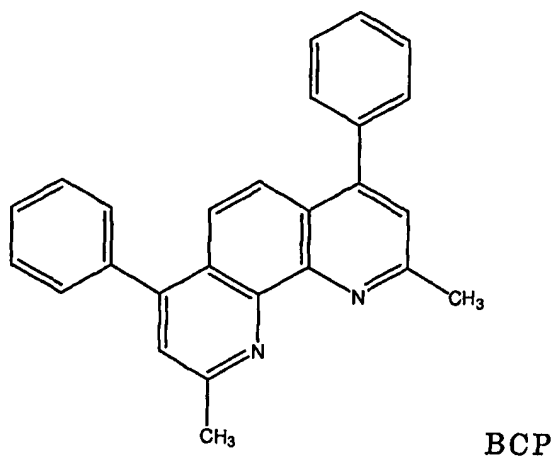


表 1 . 10mA/cm²の初期性能および寿命性能

	電 圧	輝 度	色 度 座 標	発 光 効 率	電 力 変 換 効 率	駆 動 開 始 1500 時 間 後 の 輝 度 (cd /m ²)
	(V)	(cd/m ²)	(CIE x、CIE y)	(cd/A)	(ルー メン /W)	
実施例 1	5.0	1000	(0.33,0.33)	9.1	5.7	700
実施例 2	4.5	1000	(0.28,0.35)	10.0	7.0	600
実施例 3	5.3	1000	(0.32,0.35)	9.1	5.4	800
比較例 1	7.0	110	(0.25,0.33)	5.5	2.5	300
実施例 4	5.3	1150	(0.28,0.33)	11.5	6.59	780
比較例 2	5.0	1050	(0.27,0.33)	10.5	6.6	300
実施例 5	5.0	1100	(0.27,0.33)	11.0	6.91	850
実施例 6	5.1	1250	(0.27,0.33)	12.5	7.7	840
比較例 3	4.9	1200	(0.27,0.33)	12.0	7.69	450

表 1 から明らかなように、本発明の要件 (I)、(II) 及び (III) を満たしている実施例 1～4 では駆動 1500 時間後の輝度はいずれも 600 nit 以上であり、要件 (III) を満たしていない比較例 1、2 における 300

n i t の 2 倍以上になっていたことが分かる。特に実施例 4 では電子輸送層として E T M 3 0 が優れていることが判明した。

また、実施例 5 では本発明の要件 (I)、(II) 及び (III) を満たした上で電子注入陰極として N a を用いたものが駆動 1 5 0 0 時間後の輝度が 8 5 0 n i t と更に優れた特性値を示し、比較例 2 では電子注入陰極として N a を用いても、要件 (III) を満たしていない場合には駆動 1 5 0 0 時間後の輝度が実用的でないことが判明した。

また、実施例 6 では本発明の要件 (I)、(II) 及び (III) を満たした上で電子注入陰極として C s を用いたものが駆動 1 5 0 0 時間後の輝度が 8 6 0 n i t と更に優れた特性値を示し、比較例 3 では電子注入陰極として C s を用いても、要件 (III) を満たしていない場合には駆動 1 5 0 0 時間後の輝度が実用的でないことが判明した。

産業上の利用可能性

本発明の白色系有機 E L 素子は、低電圧でありながら発光効率が高く、寿命が長く、色度変化を起こさない。このため、本発明の白色系有機 E L 素子は、実用性が高く、各種電子機器の光源等として極めて有用である。

請求の範囲

1. 一対の電極間に、2層以上の発光層と、含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体からなる電子輸送層を有する白色系有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

それぞれの発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップ $E_g(\text{Host}-i)$ が下記式 (I) を満たし、

$$2.9 \text{ eV} \leq E_g(\text{Host}-i) \quad \dots (I)$$

(式中、 $E_g(\text{Host}-i)$ は、電子輸送層側から数えて i 層目 (i は 1 から n の整数) の発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップを表わす。) かつ、電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップ ($E_g(\text{ETM})$) が下記式 (II) を満たし、

$$2.9 \text{ eV} < E_g(\text{ETM}) \quad \dots (II)$$

かつ、電子輸送層に接する発光層に含まれるホスト化合物のイオン化ポテンシャル ($I_p(\text{Host}-1)$) と電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のイオン化ポテンシャル ($I_p(\text{ETM})$) が下記式 (III)

$$I_p(\text{ETM}) \leq I_p(\text{Host}-1) + 0.3 \text{ eV} \quad \dots (III)$$

の関係を満たすことを特徴とする白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. それぞれの発光層に含まれるホスト化合物のエネルギーギャップ $E_g(\text{Host}-i)$ 及び電子輸送層に含まれる含窒素複素環誘導体又は含珪素複素環誘導体のエネルギーギャップ ($E_g(\text{ETM})$) が、下記式 (IV)

$$2.9 \text{ eV} < E_g(\text{ETM}) \leq E_g(\text{Host}-i) \quad \dots (IV)$$

の関係を満たす請求項 1 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 少なくとも 1 つの発光層が、2.9 eV 以下のエネルギーギャップを有するドーパントを含む請求項 1 又は 2 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 発光ピーク波長の異なる発光層を 2 層以上有する請求項 1 又は 2 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

5. 最大発光ピーク波長と 2 番目発光ピーク波長の差が 50 nm 以上である請求項 1 又は 2 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 前記電子輸送層又は前記電子輸送層と陰極との界面領域に、仕事関数 2.8 eV 以下の金属又はその金属の化合物を含有する請求項 1 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

7. 前記金属が Na, K, Rb, Cs, Ca, Sr 又は Ba である請求項 6 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

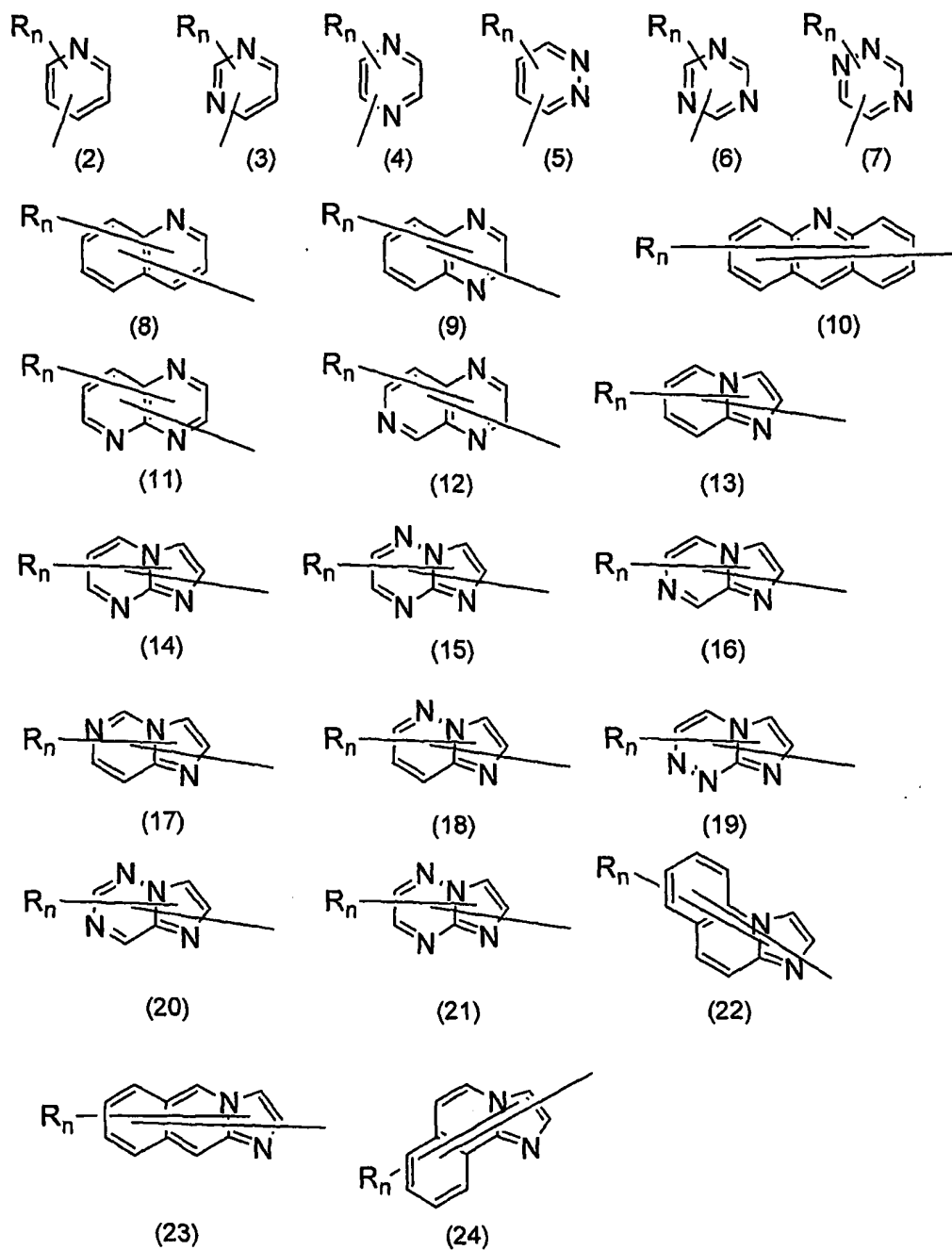
8. 前記電子輸送層が、下記一般式(1)



(式中、HArは置換もしくは無置換の含窒素複素環基、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基、Ar²は置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基、Lは単結合又は置換もしくは無置換のアリーレン基を示す。)

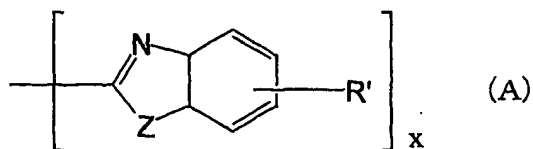
で表される含窒素複素環誘導体を含む請求項1又は2に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

9. 前記HArが、下記一般式(2)～(24)、(A)のいずれかで表される含窒素複素環基、



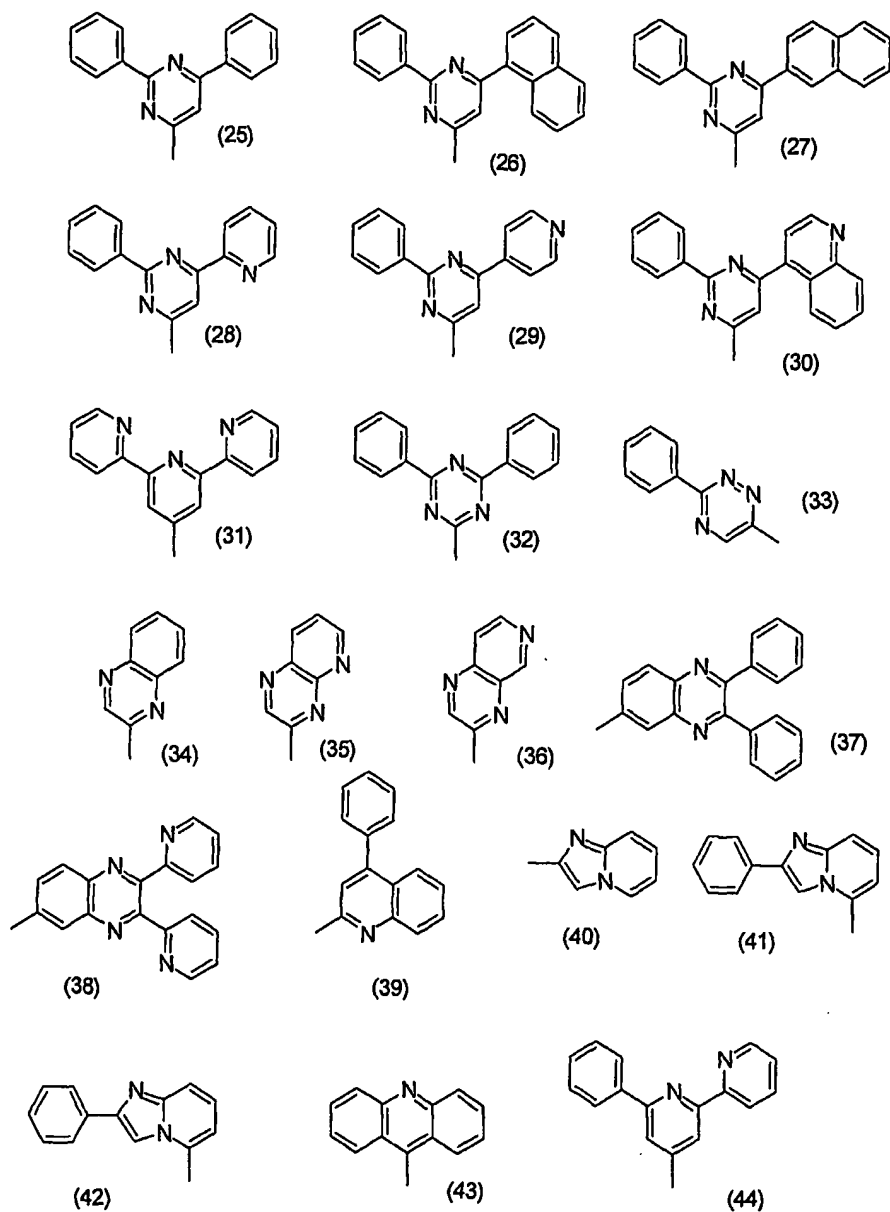
(式中、Rは、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール

基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシル基であり、 n は 0 ～ 5 の整数であり、 n が 2 以上の場合、複数の R は互いに同一でも異なっているもよく、複数の R 同士が結合して環構造を形成してもよい。）



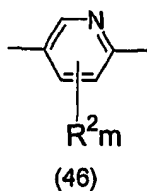
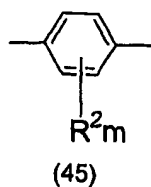
（式中、 R' は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 のヘテロアリール基、又は縮合芳香環形成基であり、 Z は、酸素原子、硫黄原子又は NR' (R' は前記 R' と同様である。) であり、 x は 2 ～ 8 の整数である。) 又は置換もしくは無置換のカルbazolリル基である請求項 8 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

10. 前記HArが、下記(25)～(44)



のいずれかで表される基である請求項8に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

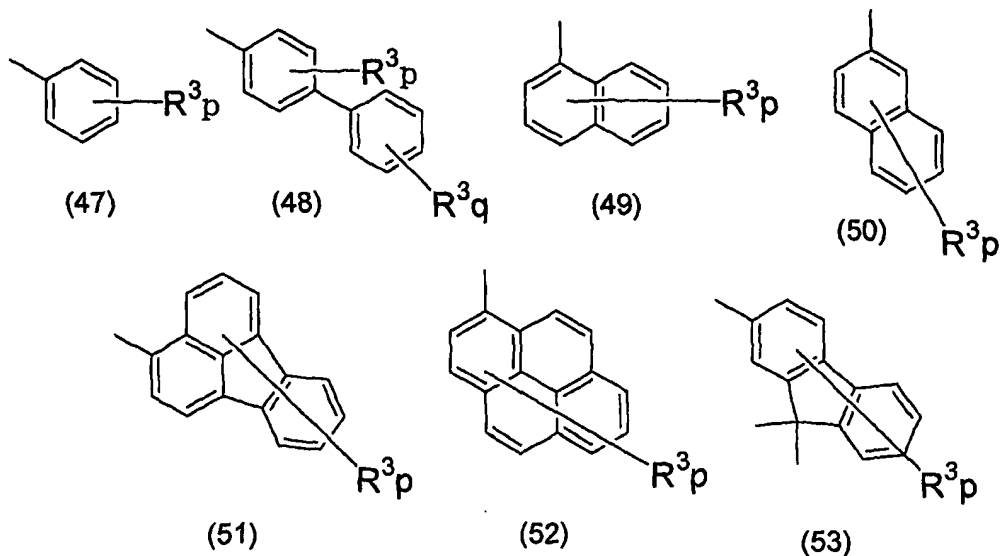
11. 前記Lが、下記一般式(45)又は(46)



(式中、 R^2 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシル基であり、 m は 0 ～ 4 の整数であり、 m が 2 以上の場合、複数の R^2 は互いに同一でも異なってもよく、複数の R^2 同士が結合して環構造を形成してもよい。)

で表される基である請求項 8 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

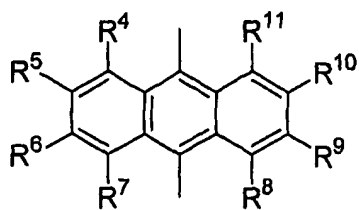
12. 前記 Ar^2 が、下記一般式 (47) ~ (53)



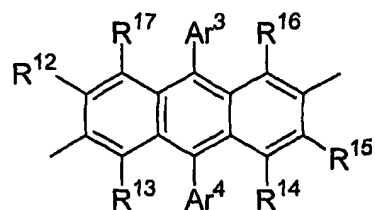
(式中、 R^3 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシル基であり、 p は 0 ~ 9 の整数、 q は 0 ~ 5 の整数であり、 p 又は $p + q$ が 2 以上の場合、複数の R^3 は互いに同一でも異なってもよく、複数の R^3 同士が結合して環構造を形成してもよい。)

のいずれかで表される基である請求項 8 に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

13. 前記 Ar^1 が、下記一般式 (54) 又は (55)



(54)



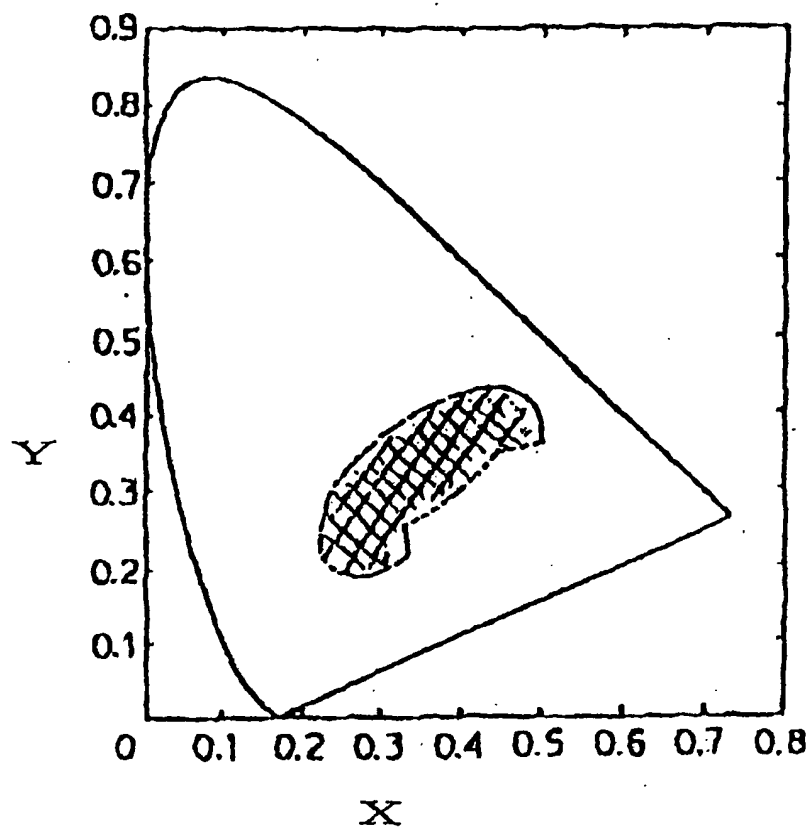
(55)

(式中、 $R^4 \sim R^{11}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基であり、 Ar^3 及び Ar^4 は、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40のヘテロアリール基である。)で表される基である請求項8に記載の白色系有機エレクトロルミネッセンス素子。

第1図

陰極
(電子注入層)
電子輸送層 (含窒素化合物)
第1発光層
第2発光層
...
第 i 発光層
...
第 n 発光層
(正孔輸送層)
(正孔注入層)
陽極

第2図



⊠ : C I E 座標における白色発光領域を示す。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009290

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ H05B33/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H05B33/00-28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2003-187978 A (Korai Kagi Kofun Yugenkoshi), 04 July, 2003 (04.07.03), Par. No. [0017]; Fig. 5 & US 2003/0099860 A1	1-13
Y	JP 2002-216969 A (Toyota Central Research And Development Laboratories, Inc.), 02 August, 2002 (02.08.02), The front page; Par. No. [0044]; Fig. 1 (Family: none)	1-13
Y	JP 2002-343571 A (Toyota Central Research And Development Laboratories, Inc.), 29 November, 2002 (29.11.02), Page 3, column 4, lines 34 to 41; Fig. 5 (Family: none)	3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26 October, 2004 (26.10.04)Date of mailing of the international search report
09 November, 2004 (09.11.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009290

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-231455 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 August, 2002 (16.08.02), Par. No. [0050]; chemical formula (8) & EP 949696 A2	8-13
E,X	JP 2004-221045 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 05 August, 2004 (05.08.04), Example 5 & WO 2004/47499 A1	1-13
Y	JP 2003-86380 A (Eastman Kodak Co.), 20 March, 2003 (20.03.03), Device 6 on table 2 & US 2003/0068524 A1	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009290

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-231455 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 August, 2002 (16.08.02), Par. No. [0050]; chemical formula (8) & EP 949696 A2	8-13
E,X	JP 2004-221045 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 05 August, 2004 (05.08.04), Example 5 & WO 2004/47499 A1	1-13
Y	JP 2003-86380 A (Eastman Kodak Co.), 20 March, 2003 (20.03.03), Device 6 on table 2 & US 2003/0068524 A1	1-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H05B33/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H05B33/00-28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2003-187978 A (光磊科技股▲ふん▼有限公司) 2003.07.04, 段落【0017】及び第5図 & US 2003/0099860 A1	1-13
Y	JP 2002-216969 A (株式会社豊田中央研究所) 2002.08.02, 公報フロント頁、段落【0044】及び第1図 (ファミリーなし)	1-13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26.10.2004

国際調査報告の発送日

09.11.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

里村 利光

2V

9314

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2002-343571 A (株式会社豊田中央研究所) 2002. 11. 29, 第3頁第4欄第34行~第41行、及び第 5図 (ファミリなし)	3
Y	J P 2002-231455 A (出光興産株式会社) 2002. 08. 16, 段落【0050】、及び【化8】 & E P 949696 A2	8-13
E, X	J P 2004-221045 A (出光興産株式会社) 2004. 08. 05, 実施例5 & W O 2004/47499 A1	1-13
Y	J P 2003-86380 A (イーストマンコダックカンパニ ー) 2003. 03. 20, 【表2】中のデバイス6 & U S 2003/0068524 A1	1-13